



Mesure de l'ozone troposphérique à partir d'observations satellitaires dans le domaine de l'infrarouge

Solène Turquety

► To cite this version:

Solène Turquety. Mesure de l'ozone troposphérique à partir d'observations satellitaires dans le domaine de l'infrarouge. Océan, Atmosphère. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2003. Français. NNT: . tel-00011409

HAL Id: tel-00011409

<https://theses.hal.science/tel-00011409>

Submitted on 18 Jan 2006

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Thèse de Doctorat de l'Université Paris 6

Spécialité :

Océanologie, Météorologie et Environnement

présentée par

Solène Turquety

pour obtenir le grade de Docteur de l'Université Paris 6

MESURE DE L'OZONE TROPOSPHÉRIQUE
À PARTIR
D'OBSERVATIONS SATELLITAIRES
DANS LE DOMAINE DE L'INFRAROUGE

soutenue le 17 novembre 2003

devant le jury composé de :

M.	Gérard Mégie	Directeur de thèse
Mme.	Cathy Clerbaux	Co-directrice de thèse
M.	Vincent Cassé	Rapporteur
M.	Patrick Chazette	Rapporteur
M.	Claude Camy-Peyret	Examineur
M.	Daniel Jacob	Examineur
Mme.	Katia Laval	Examinatrice
M.	Alain Chedin	Invité

Remerciements

Cette thèse n'aurait pas été réalisable sans l'aide et le soutien d'un grand nombre de personnes, que je tiens à remercier ici.

J'adresse tout d'abord mes remerciements à tous les membres du jury, Messieurs Claude Camy-Peyret, Vincent Cassé, Patrick Chazette, Alain Chedin et Daniel Jacob et Madame Katia Laval, pour l'intérêt qu'ils ont bien voulu porter à mon travail. Leurs conseils m'ont été très précieux et m'ont permis d'améliorer la qualité de ce manuscrit. Je remercie tout particulièrement mes rapporteurs Messieurs Claude Camy-Peyret, Vincent Cassé et Patrick Chazette pour le temps consacré à la lecture de cette thèse ainsi que pour leurs diverses suggestions et corrections, même si Monsieur Claude Camy-Peyret n'a finalement pas pu être officiellement rapporteur. Je remercie Monsieur Vincent Cassé d'avoir accepté de le remplacer au pied levé. Je remercie également Messieurs Claude Camy-Peyret et Vincent Cassé pour avoir suivi mes travaux tout au long de cette thèse par le biais de mon comité de thèse.

Ces trois années de thèse ont été réalisées au Service d'Aéronomie. Je remercie Monsieur Gérard Mégie pour m'y avoir accueillie à l'occasion de mon stage de DEA et pour avoir accepté de diriger ma thèse. Merci également à Monsieur Philippe Waldteufel, directeur du laboratoire, pour avoir permis le déroulement de ma thèse dans les meilleures conditions.

Un grand merci à Cathy Clerboux pour avoir encadré ma thèse et pour m'avoir fait partager son enthousiasme pour l'observation de l'atmosphère depuis l'espace et pour la recherche en général. Je la remercie tout particulièrement pour sa confiance, pour la grande liberté qu'elle m'a laissée dans mon travail, tout en me guidant efficacement dans mes recherches, ainsi que pour ses encouragements dans les moments difficiles. Je remercie également Patrick Chazette pour avoir initié les travaux de recherche sur IASI au Service d'Aéronomie pour l'inversion des gaz traces en utilisant les techniques des réseaux de neurones, et Juliette Hadji-Lazaro pour tout le travail de "débroussaillage" qu'elle a réalisé au cours de sa thèse sur l'inversion du CO à partir des mesures IMG/ADEOS, avec l'aide de Sylvie Thiria pour le développement du réseau de neurone. Je remercie aussi Juliette pour tous les échanges et toutes les discussions qui m'ont permis d'avancer plus rapidement ainsi que pour son attention, sa bonne humeur et son calme (à toute heure du jour et de la nuit !) Merci également à Piet Coheur, membre belge de l'équipe IASI, pour les discussions géostationnaires de fin de semaine.

Je tiens d'autre part à remercier tous les membres du Service d'Aéronomie. J'ai beaucoup apprécié leur compagnie et l'ambiance chaleureuse régnant au sein du laboratoire.

Je remercie Didier Hauglustaine pour nous avoir fourni les sorties du modèle MOZART, Tony Clough pour avoir mis à notre disposition le modèle de transfert radiatif LBLRTM, Pascal Prunet pour nous avoir fourni les matrices de covariances d'erreur

sur les températures prévues pour IASI, Claude Camy-Peyret, Sébastien Payan et Victor Feirerra pour nous avoir permis d'utiliser les données du second vol de l'instrument LPMA/IASI (et pour nous avoir apporté leur aide dans le traitement et l'interprétation des données), Jean-François Lamarque pour son aide dans l'utilisation des données TOMS/ADEOS de niveau 2 et Andreas Richter et Randall V. Martin pour nous avoir fourni les colonnes troposphériques de NO₂ déduites des données GOME. Je remercie également l'IMGDIS/ERSDAC pour nous avoir fourni les données IMG/ADEOS de niveau 1, ainsi que le centre de données de l'Institut Pierre-Simon Laplace pour nous avoir fourni les températures de surface et atmosphérique ECMWF colocalisés aux mesures IMG.

Je remercie du fond du cœur mes parents, Joël et Anne-Marie Turquety, mon frère Benoît et mes sœurs Anne-Cécile et Jannick pour leur présence et leur soutien à toute épreuve. De peur d'oublier du monde, je remercie en bloc tous mes amis bretons (de naissance ou d'adoption) pour m'avoir permis de laisser l'ozone à Paris pour me régénérer les neurones à l'air pur, et tous mes amis parisiens (de naissance ou d'adoption) pour les déjeuners et les p'tites soirées de semaine. Enfin, merci pour tout à Éric.

Résumé

Dans les années à venir, plusieurs missions spatiales permettront l'observation globale des concentrations de nombreux gaz traces. L'objectif de cette thèse a été d'évaluer les capacités d'un instrument mesurant depuis l'espace le rayonnement dans l'infrarouge thermique par visée au nadir pour l'observation de l'ozone troposphérique.

Ces travaux ont été réalisés dans le cadre de la préparation de la mission IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer), pour laquelle le Service d'Aéronomie développe un algorithme opérationnel d'inversion des gaz traces CO, CH₄ et O₃. Le lancement de IASI est prévu en 2005, 2010 et 2015 sur les trois plate-formes successives METOP. Un algorithme d'inversion de l'ozone a été développé, ainsi qu'un module d'analyse de l'erreur d'inversion. Les données satellitaires mesurées par l'instrument IMG, présent sur le satellite ADEOS (1996-1997), et les mesures ballon LPMA/IASI mesurées en août 2002, nous ont permis de tester les développements sur des mesures réelles et de valider la méthode. Une première interprétation des distributions globales d'ozone troposphérique IMG/ADEOS a été réalisée en comparant les différentes informations disponibles sur sa production et son transport.

Les études entreprises pour IASI ont pu être étendues à l'évaluation des capacités d'un instrument similaire embarqué sur un satellite en orbite géostationnaire pour l'observation des gaz traces.

Abstract

Different forthcoming satellite missions will allow the global observation of several trace gases. The objective of this thesis was to evaluate the capabilities of an instrument measuring from space the thermal infrared radiation in a nadir viewing geometry for the measurement of tropospheric ozone.

This work was undertaken in the framework of the preparation of the IASI mission (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer), for which the Service d'Aéronomie develops an operational algorithm for the retrieval of trace gases CO, CH₄, and O₃. IASI is due for launch in 2005, 2010 and 2015 on board the three successive european satellites METOP. An inversion algorithm was developed for ozone retrieval, as well as an error analysis module. The satellite data provided by the IMG instrument, present on board the satellite ADEOS (1996-1997), and the balloon data provided by LPMA/IASI (august 2002), were used to test our developments on real data and to validate the method. A first interpretation of the IMG/ADEOS global distributions of tropospheric ozone has been undertaken by comparing the different informations available on its production and transport.

These studies for IASI have been extended to the evaluation of the capacities of a similar instrument present on board a satellite in geostationary orbit for the observation of trace gases.

Table des matières

Abréviations et acronymes	9
Nomenclature et notations	13
Introduction générale	15
1 L’ozone troposphérique	19
1.1 Photochimie de l’ozone troposphérique	20
1.1.1 Cas d’une atmosphère naturelle	20
1.1.2 Cas d’une atmosphère polluée	23
1.1.3 Les régimes chimiques	23
1.1.4 Sources et puits des principaux précurseurs de l’ozone	24
1.1.5 Durées de vie caractéristiques dans la troposphère	26
1.2 Transport dans la troposphère	27
1.2.1 Convection et instabilité barocline	27
1.2.2 La circulation générale troposphérique	29
1.2.3 La couche limite	30
1.2.4 Les échanges stratosphère-troposphère	31
1.3 Modélisation de l’ozone	32
1.3.1 Le modèle de chimie-transport MOZART	32
1.3.2 Climatologie de l’ozone UGAMP	33
1.3.3 Variabilité spatiale et temporelle de l’ozone	34
1.4 Conclusions	41
2 Observations spatiales dans l’infrarouge	43
2.1 Le transfert radiatif dans l’infrarouge thermique	44
2.1.1 Émission de rayonnement	44
2.1.2 Transmission et atténuation du rayonnement	45
2.1.3 Équation du transfert radiatif	46
2.1.4 Interaction rayonnement - atmosphère	48
2.1.5 Modélisation du transfert radiatif	52
2.1.6 Spectres atmosphériques	53
2.2 Problème direct et problème inverse	56
2.2.1 Formalisme classique du problème inverse	58
2.2.2 Théorie de l’inversion	61
2.2.3 Les réseaux de neurones pour l’inversion	61

3	L'instrument IASI	65
3.1	La spectrométrie à transformée de Fourier	65
3.2	La mission IASI	67
3.2.1	Géométrie d'observation IASI	69
3.2.2	Caractéristiques instrumentales	69
3.2.3	Les produits IASI	72
3.3	Précurseur de IASI : IMG/ADEOS	74
3.3.1	L'instrument IMG	75
3.3.2	Adaptation à IASI	76
3.4	Conclusions	77
4	Études de sensibilité	79
4.1	Étude des fonctions de poids IASI	79
4.2	Évaluation de l'approximation linéaire	83
4.3	Contenu en information de la mesure	85
4.3.1	Quantité d'informations indépendantes	86
4.3.2	Degrés de liberté du signal et résolution verticale	89
4.4	Conclusions	92
5	Inversion de l'ozone	95
5.1	Paramètres d'entrée	96
5.2	Paramètres de sortie	97
5.3	Description du module d'inversion	98
5.3.1	Notions de base sur les réseaux de neurones	99
5.3.2	Architecture du réseau de neurones	100
5.4	Développement du module d'inversion	102
5.4.1	Constitution d'une base de données complète	102
5.4.2	Phase d'apprentissage du réseau de neurones	105
5.5	Caractérisation des inversions et analyse de l'erreur	107
5.5.1	Sensibilité du système d'observation	107
5.5.2	Performances de l'algorithme	112
5.5.3	Tests de cohérence interne	118
5.6	Classification de profils d'ozone	123
5.6.1	Méthode de classification	123
5.6.2	Résultats de la classification	124
5.6.3	Sensibilité IASI correspondant aux différentes classes	128
5.6.4	Attribution d'une classe	128
5.7	Conclusions	131
6	Validation sur l'inversion de spectres réels	133
6.1	Application aux mesures spatiales IMG/ADEOS	133
6.1.1	Températures associées à IMG	134
6.1.2	Filtres de qualité	136
6.1.3	Inversion de l'ozone	141
6.1.4	Estimation de l'erreur d'inversion	146
6.2	Comparaison des inversions IMG aux mesures disponibles	149
6.2.1	Colonnes totales TOMS	149

6.2.2	Sondes d'ozone	154
6.2.3	Colonnes troposphériques TOMS	170
6.3	Application aux mesures ballon LPMA/IASI	174
6.3.1	Étude d'une mesure LPMA/IASI simulée	176
6.3.2	Inversion de l'ozone LPMA/IASI	177
6.4	Conclusions	179
7	Analyse de l'ozone troposphérique IMG/ADEOS	183
7.1	Origine de l'ozone troposphérique	183
7.1.1	Les précurseurs et leur détection	184
7.1.2	Les principales sources de précurseurs et leur détection	187
7.1.3	Localisation des sources de précurseurs détectées	195
7.2	Transport	198
7.3	Premier bilan global	202
7.4	Conclusions	207
8	Observations géostationnaires	209
8.1	Spécifications instrumentales	210
8.1.1	Résolution spatiale et temporelle	210
8.1.2	Résolution spectrale et bruit	211
8.2	Observations pour la chimie	212
8.2.1	Objectifs	212
8.2.2	Variabilités	212
8.2.3	Espèces détectées par un sondeur IR	213
8.3	Contenu en information	214
8.3.1	Sensibilité de l'instrument	219
8.3.2	Quantité d'information indépendante	220
8.3.3	Impact du niveau de bruit	220
8.3.4	Résolution verticale	225
8.4	Conclusions	227
	Conclusion générale	229

Abréviations et acronymes

ACP Analyse en Composantes Principales
ADEOS ADvanced Earth Observing Satellite
AFGL Air Force Geophysics Laboratory
AI Aerosol Index
AIRS Atmospheric InfraRed Sounder
AVHRR Advanced Very High Resolution Radiometer
ATSR Along Track Scanning Radiometer
CCM Community Climate Model
CIESIN Center for International Earth Science Information Network
CLA Couche Limite Atmosphérique
CNES Centre National d'Etudes Spatiales
CMDL Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory
DAAC Data Active Archive Center
DU Dobson Unit
ECMWF European Center for Medium range Weather Forecast (en français : **CEPMMT**, Centre Européen pour la Prévision Météorologique Moyen Terme)
EDGAR Emission Database for Global Atmospheric Research
EOS Earth Observing System
EPS EUMETSAT Polar System
ERS European Remote Sensing
ESA European Space Agency (en français : **ASE** Agence Spatiale Européenne)
EUMETSAT EUropean organization for the exploitation of METeorological SATellites
GeoTROPE Geostationary Tropospheric Pollution Explorer
GOME Global Ozone Monitoring Experiment
GSFC Goddard Space Flight Center
HCNM HydroCarbures Non Méthaniques
IASB Institut d'Aéronomie Spatiale de Belgique
IASI Infrared Atmospheric Sounding Interferometer
IMG Interferometric Monitor for Greenhouse gases
IMGDIS IMG Data and Information System

IPCC Intergovernmental Panel on Climate Change
IPSL Institut Pierre Simon Laplace
IR InfraRouge
ISSWG IASI Sounding Science Working Group
ITCZ Inter Tropical Convergence Zone
JAROS JApAn Resources Observation System
LBLRTM Line-By-Line Radiative Transfer Model
LIDAR LIght Detection And Ranging
LPMA Laboratoire de Physique Moléculaire et Applications
LSCE Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement
METOP METeorology OPerationnal
MITI Ministry of International Trade and Industry
MOPITT Measurements Of Pollution In The Troposphere
MOZART Model for OZone And Related chemical Tracers
MSG Meteosat Second Generation
NASA NAtional Space Agency
NASDA NAtional Space Development Agency of Japan
NCAR National Center for Atmospheric Research
NDSC Network for Detection of Stratospheric Change
NDVI Normalized Differential Vegetation Index
NEDT Noise Equivalent Temperature Difference
OMI Ozone Monitoring Instrument
OTD Optical Transient Detector
POLDER POLarization and Directionality of the Earth's Reflectances
RADAR RAdiation Detection And Ranging
RTIASI modèle de transfert radiatif IASI
RMS Root Mean Square ou différence quadratique
SA Service d'Aéronomie
SAGE Stratospheric Aerosol and Gas Experiment
SBUV Solar Backscattered Ultra Violet
SCIAMACHY Scanning Imaging Absorption SpectroMeter for Atmospheric CHarto-graphY
SME Solar Mesosphere Explorer
SVD Singular Value Decomposition ou décomposition en valeurs singulières
TES Tropospheric Emission Spectrometer
TOMS Total Ozone Mapping Spectrometer
TROC TROpospheric Chemistry and climate mission

TTO Tropical Tropospheric Ozone

TOVS TIROS Operational Vertical Sounder

UGAMP UK Universities' Global Atmospheric Modelling Programme

ULB Université Libre de Bruxelles

ULg Université de Liège

UV Ultra Violet

WMO World Meteorological Organization

WOUDC World Ozone Ultraviolet Data Center

Nomenclature et notations

La théorie du problème inverse est présentée en termes de vecteurs et de matrices en suivant le système de notations de *Rodgers* [1976, 1990, 2000], avec en particulier les règles suivantes :

- un vecteur est représenté par un caractère gras en minuscule, par exemple \mathbf{x} ;
- une matrice est représentée par un caractère gras en majuscule, par exemple \mathbf{A} , et sa transposée par \mathbf{A}^T .

De même

- une fonction est représentée par un caractère gras en minuscule, par exemple \mathbf{f} ;
- un vecteur de fonctions est représenté par un caractère gras en majuscule, par exemple \mathbf{F} .

D'autre part, les variables estimées sont représentées avec un accent circonflexe, par exemple $\hat{\mathbf{x}}$ est une estimation du vecteur \mathbf{x} .

Principales variables utilisées

Transfert radiatif :

ν nombre d'onde (cm^{-1}) ;

T température (K) ;

ρ densité locale de l'air (molécules cm^{-3}) ;

h constante de Planck ($h = 6.6262 \cdot 10^{-34} \text{ J s}$) ;

c vitesse de la lumière dans le vide ($c = 2.9979 \cdot 10^{10} \text{ cm s}^{-1}$) ;

k constante de Boltzmann ($k = 1.380610^{-23}$) ;

B_ν fonction de Planck au nombre d'onde ν ($\text{W}/(\text{cm}^2\text{cm}^{-1}\text{sr})$) ;

L_ν luminance au nombre d'onde ν ($\text{W}/(\text{cm}^2\text{cm}^{-1}\text{sr})$) ;

J_ν^{em} terme d'émission thermique ($\text{W}/(\text{cm}^2\text{cm}^{-1}\text{sr})$) ;

$\epsilon_{0,\nu}$ émissivité de la surface (sans dimension) ;

ϵ_ν coefficient d'émission (cm^{-1}) ;

k_ν coefficient d'absorption volumique (cm^{-1}) ;

T_ν transmittance du milieu (sans dimension) ;

τ_ν épaisseur optique du milieu (sans dimension) ;

ΔE énergie associée aux transitions électroniques (J) ;

v niveaux d'énergie vibrationnels ;

J niveaux d'énergie rotationnels.

Problème direct - problème inverse :

\mathbf{f} problème direct ;

\mathbf{F} modèle direct ;

\mathbf{R} modèle inverse ;

\mathbf{y} vecteur mesure instrumentale ($m \times 1$) (ici contenant les m luminances mesurées considérées pour le problème) ;

ε erreur sur la mesure \mathbf{y} ($m \times 1$) ;

\mathbf{S}_ε matrice de covariance de l'erreur sur la mesure ε ($m \times m$) ;

\mathbf{x} vecteur état réel recherché ($n \times 1$) (ici contenant le profil atmosphérique d'ozone sur n niveaux verticaux) ;

$\hat{\mathbf{x}}$ vecteur état \mathbf{x} estimé (inversé) ($n \times 1$) ;

$\hat{\mathbf{c}}$ vecteur état inversé estimé ($n_c \times 1$) pour l'inversion de colonnes intégrées ;

$\hat{\mathbf{r}}$ vecteur état inversé estimé ($n_r \times 1$) pour l'inversion de luminances ;

\mathbf{x}_a vecteur état *a priori* ($n \times 1$) ;

\mathbf{S}_a matrice de covariance de l'état *a priori* \mathbf{x}_a ($n \times n$) ;

\mathbf{b} paramètres du problème direct non-inversés mais utilisés pour l'inversion ($l \times 1$) ;

$\hat{\mathbf{b}}$ paramètres \mathbf{b} estimés ($l \times 1$) ;

ε_b erreur sur les paramètres $\hat{\mathbf{b}}$ ($l \times 1$) ;

$\mathbf{S}_{\varepsilon_b}$ matrice de covariance de l'erreur sur les paramètres ε_b ($l \times l$) ;

\mathbf{w} paramètres du problème inverse.

Caractérisation des inversions :

\mathbf{K} fonctions de poids du modèle direct (caractérisant l'instrument) ($m \times n$) ;

\mathbf{G} matrice de gain du problème inverse ($n \times m$ ou $n_c \times m$) ;

\mathbf{A} matrice des noyaux caractérisant les résultats de l'inversion ($n \times n$ ou $n_c \times n$) ;

\mathbf{I}_n matrice identité ($n \times n$)

\mathbf{C} opérateur colonne ($n_c \times n$) (calcul des colonnes intégrées à partir des profils verticaux) ;

d_s nombre de degrés de liberté du signal.

Réseaux de neurones (RN) :

\mathbf{R} modèle inverse, fonction globale du RN ;

\mathbf{W} paramètres du RN ;

f, g fonctions d'activation des neurones du RN, respectivement sigmoïdale et linéaire ;

\mathcal{C} fonction de coût ;

η taux d'apprentissage.

Introduction générale

Malgré sa faible abondance, l'ozone (O_3), forme triatomique de l'oxygène (O_2), est au cœur de problèmes de santé publique et de questions environnementales majeurs : exposition au rayonnement ultraviolet (UV) nocif, dégradation de la qualité de l'air et changements climatiques sont étroitement liés aux concentrations d' O_3 dans l'atmosphère.

L'atmosphère terrestre est naturellement majoritairement composée d'azote (N_2 , 78 % de l'air sec), d'oxygène (O_2 , 21 % de l'air sec), d'argon (A, 0.9 % de l'air sec), de dioxyde de carbone (CO_2 , 0.037 % de l'air sec) et de vapeur d'eau (H_2O , jusqu'à quelques % de l'air humide). À ces gaz s'ajoutent un certain nombre de gaz minoritaires (ou gaz traces), dont l' O_3 fait partie. Tous ces constituants participent à l'équilibre chimique et radiatif particulier du système Terre-atmosphère qui a permis l'apparition et le maintien de la vie.

L' O_3 joue un rôle primordial dans cet équilibre. Il est présent à 90 % dans la stratosphère (entre environ 8-18 km et 50 km d'altitude) où il est produit par un cycle de réactions photochimiques entre l'oxygène moléculaire et le rayonnement solaire. Il forme ce que l'on appelle communément la couche d'ozone, véritable bouclier contre le rayonnement UV nocif puisque l' O_3 est l'unique absorbant dans le domaine spectral compris entre 240 et 300 nm (UV-B et C, domaines spectraux les plus dangereux). Seulement 10 % de la concentration totale d' O_3 se trouve dans la troposphère (entre la surface et 8-18 km d'altitude) mais sa présence y est tout aussi vitale. Dans cette région, sa distribution résulte à la fois du transport de masses d'air riche en O_3 depuis la stratosphère et de processus de production photochimique *in situ*. En tant qu'oxydant puissant mais aussi en tant que principale source de l'agent oxydant le plus important, le radical hydroxyle (OH), l' O_3 détermine le pouvoir oxydant de l'atmosphère. Du point de vue radiatif, il constitue l'un des gaz à effet de serre les plus efficaces, avec la vapeur d'eau, le CO_2 et le méthane (CH_4), permettant le réchauffement de la troposphère à des températures favorables au développement de la vie (augmentation de 33°C en moyenne en surface).

Depuis la formation de la Terre, l'équilibre de l'atmosphère est soumis à d'importants forçages naturels (cycle solaire, éruptions volcaniques) associés à de grandes variations climatiques. Au cours du siècle dernier, l'explosion démographique et le développement des activités agricoles et industrielles ont affecté l'environnement global de façon déterminante. Ce nouveau forçage anthropique a, en particulier, changé significativement la composition de l'atmosphère. Les études menées par le groupe intergouvernemental sur l'évolution du climat de l'ONU ont mis en lumière les bouleversements induits par l'homme sur le climat global de la planète ainsi que les conséquences désastreuses qu'ils impliquent pour les décennies à venir [IPCC, 2001].

La forte augmentation depuis l'ère pré-industrielle des concentrations de gaz traces stables tels que le CO_2 , le CH_4 et le protoxyde d'azote (N_2O) et l'apparition au cours du 20^e siècle de nombreux gaz industriels synthétiques (*e.g.* chlorofluorocarbures, CFC, hydrochlorofluorocarbures, HCFC) impliquent un effet de serre additionnel qui se traduit

par une hausse des températures dans la troposphère. Le réchauffement constaté depuis la fin du 19^e siècle (+0.6°C) ne peut s'expliquer que si les forçages naturels et anthropiques sont pris en compte. D'autre part, au cours des dernières décennies, une destruction de la couche d'O₃ liée aux émissions de polluants industriels extrêmement stables (CFCs notamment) a été observée.

L'augmentation des émissions de gaz traces plus réactifs, tels que le monoxyde de carbone (CO) et les oxydes d'azote (NO_x=NO+NO₂), dont les effets nuisibles pour la santé humaine et les écosystèmes sont aujourd'hui avérés, dégrade considérablement la qualité de l'air. Elle est, d'autre part, la cause principale de l'augmentation des concentrations d'O₃ troposphérique constatée, qui s'élève globalement à 30 % depuis la révolution industrielle. L'O₃ étant toxique pour les êtres vivants et la végétation, son augmentation accentue les problèmes de mauvaise qualité de l'air. La modification de la photochimie de la troposphère conduit d'autre part à une diminution globale des concentrations de OH et donc à une accumulation de nombreux gaz traces, pour lesquels OH constitue le puits principal [WMO, 1999]. Par la formation d'O₃ et par la modification de la durée de vie du CH₄, elle a également un impact sur l'effet de serre.

La prise de conscience des effets néfastes des activités humaines sur la qualité de l'air et sur le climat de la planète a conduit au développement de stratégies nationales et internationales concertées, par exemple la convention sur la pollution atmosphérique trans-frontalière (LRTAP, 1979) et ses protocoles pour la limitation et la prévention de la pollution atmosphérique, le protocole de Montréal (1987) pour l'arrêt des émissions de CFCs, considérés comme les principaux destructeurs d'O₃ dans la stratosphère ou la convention cadre des Nations Unies sur le changement climatique (UNFCCC) pour la réduction des émissions de gaz à effet de serre (les premières bases d'un accord international ont été fournies par le protocole de Kyoto en 1997).

Pour fixer les objectifs et mettre au point les stratégies, une bonne compréhension des processus régissant l'équilibre de l'atmosphère est nécessaire. Les modèles atmosphériques de chimie-transport tridimensionnels globaux permettent un couplage explicite complet des processus photochimiques et météorologiques, avec ou sans rétro-actions (*i.e.* "on-line" ou "off-line"). Les progrès réalisés dans la connaissance des mécanismes et dans leur modélisation, ainsi que l'augmentation constante des capacités de calcul numérique, rendent aujourd'hui réalisable la simulation de l'évolution globale de l'atmosphère et du climat sur de longues périodes de temps. Pour le suivi plus précis et la prévision de la pollution atmosphérique, des modèles limités à des échelles locales et régionales sont développés. Des modèles globaux ayant la possibilité de "zoomer" sur une région donnée sont aujourd'hui réalisés afin de coupler les différentes échelles.

Les résultats des modèles présentent cependant encore de trop fortes incertitudes. Celles-ci sont principalement associées à l'incertitude sur la quantification des sources de polluants primaires et de leurs puits, mais aussi à l'évaluation de l'importance relative des différents processus (pour l'ozone par exemple, de l'importance relative du transport depuis la stratosphère et de la production photochimique *in situ*).

Une surveillance continue de la distribution des principaux gaz traces dans la troposphère, en particulier de l'ozone et de ses précurseurs, reste donc essentielle afin d'améliorer notre connaissance de la chimie troposphérique et de son interaction avec le climat. Les données sont également indispensables pour évaluer la qualité des modèles et valider les résultats obtenus. Elles sont de plus en plus utilisées pour contraindre l'état de l'atmosphère et/ou les sources de polluants primaires (en utilisant les techniques d'assimilation

de données et de modélisation inverse respectivement) pour une quantification plus précise des processus.

Même si des mesures précises, depuis le sol ou *in situ*, sur des échelles locales et régionales sont indispensables pour le suivi et la prévision de la qualité de l'air, des mesures globales fournies par les missions satellitaires pour de plus en plus d'espèces chimiques sont nécessaires afin de rendre compte du transport à moyenne et grande échelle pour les études globales de la photochimie et de son interaction avec le climat.

Les instruments embarqués sur satellite dédiés à l'observation de la composition chimique de l'atmosphère sont actuellement principalement basés sur une télédétection passive, c'est-à-dire sur la mesure à distance d'un rayonnement émis par une source naturelle. Le rayonnement solaire émis dans le domaine de l'UV-visible-proche IR, rétro-diffusé par l'atmosphère vers l'espace, et le rayonnement IR émis par la surface de la Terre et traversant l'atmosphère sont les principales sources utilisées.

Pour les études de la composition de la basse et de la moyenne atmosphère, une observation en visée au nadir (vers le bas) est souvent la plus utilisée car elle permet d'obtenir une bonne résolution spatiale et une meilleure sensibilité à la troposphère. D'autre part, le rayonnement IR est bien adapté à l'étude de la troposphère car de nombreuses molécules comportent des signatures d'absorption et d'émission dans ce domaine spectral. Le rayonnement mesuré au sommet de l'atmosphère dépend alors de la surface émettrice (émissivité, température) ainsi que des propriétés radiatives de l'atmosphère (absorption, émission et diffusion), qui elles-mêmes dépendent de sa composition et de sa température. Cette dépendance est décrite par les équations du transfert radiatif (problème direct). Afin d'accéder aux concentrations des espèces recherchées, le rayonnement mesuré doit être interprété, ce qui nécessite la mise en œuvre d'un algorithme d'inversion des mesures. Les méthodes développées reposent généralement sur la comparaison et l'ajustement d'une simulation du problème direct réalisée à partir d'une connaissance *a priori* de l'état de l'atmosphère au rayonnement mesuré. Dans le cas des mesures satellitaires, elles doivent être rapides et robustes afin de permettre le traitement en temps réel des données mesurées depuis l'espace. La disponibilité de codes de transfert radiatif haute-résolution et de modèles de chimie-transport de plus en plus complets et rapides permet de travailler sur des simulations réalistes pour la préparation des futures missions.

Mis à part IMG (Interferometric Monitor for Greenhouse gases) [Kobayashi *et al.*, 1999a], qui a volé 8 mois en 1996–1997 à bord du satellite ADEOS, et MOPITT (Measurements of Pollution in the Troposphere) [Drummond and Mand, 1996], lancé en 1999 sur le satellite Terra, peu de missions spatiales ont jusqu'à présent été conçues pour l'observation de la composition chimique de la troposphère. L'instrument GOME (Global Ozone Monitoring Experiment) [Burrows *et al.*, 1999], lancé en 1995 à bord du satellite ERS-2, et son successeur SCIAMACHY (Scanning Imaging Absorption SpectroMeter for Atmospheric CHartographY) [Bovensmann *et al.*, 1999], lancé en 2002 sur ENVISAT, permettent toutefois la détection des concentrations troposphériques de nombreuses espèces traces. Les observations de la chimie troposphérique vont considérablement augmenter dans les années à venir avec le lancement de TES (Tropospheric Emission Spectrometer) [Beer *et al.*, 2001] et OMI (Ozone Monitoring Instrument) [Laan *et al.*, 2001] en janvier 2004 à bord de Aura puis, l'année suivante, de IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) [Cayla and Javelle, 1995] et GOME-2 sur METOP. De nouvelles missions sont actuellement en cours de définition pour des applications opérationnelles locales et régionales comme la surveillance et la prévision de la qualité de l'air ou de l'indice UV

au sol. EUMETSAT s'intéresse notamment à de telles applications pour la définition du géostationnaire Post-MSG (Post-Meteosat Second Generation).

Le Service d'Aéronomie (SA) est impliqué depuis 1995 dans la préparation de la mission IASI pour les études du climat et de la chimie, en particulier pour le développement d'un algorithme d'inversion des constituants traces de l'atmosphère et l'assimilation des espèces mesurées dans des modèles de chimie-transport afin de générer des champs 3-D contraints par les observations. Les inversions de CO, d'O₃ et de CH₄ feront partie des produits fournis de manière opérationnelle pour IASI. Le mode opérationnel implique le traitement en temps réel d'un important volume de données, ce qui a conduit au choix d'une méthode d'inversion basée sur les techniques des réseaux de neurones [Clerbaux *et al.*, 1995], dont les bonnes performances ont été démontrées au cours d'un travail d'intercomparaison de différents algorithmes d'inversion [Clerbaux *et al.*, 2002]. Les premières études ont porté sur l'inversion et l'assimilation des colonnes totales de CO [Hadjilazaro *et al.*, 1999; Hadji-Lazaro, 1999; Clerbaux *et al.*, 2001]. Ces études se poursuivent actuellement pour l'inversion du CO, mais aussi de l'O₃ et du CH₄.

Cette thèse s'intègre dans ces travaux de recherche, avec comme principal objectif l'étude des capacités d'un instrument de type IASI pour l'observation et l'analyse de la distribution de l'ozone dans l'atmosphère. L'essentiel du travail a consisté à développer la méthode d'inversion, en visant à découpler les contributions troposphérique et stratosphérique, et à évaluer les performances attendues en terme de sensibilité verticale et de bilan d'erreurs. Les observations réalisées par IMG à bord du satellite ADEOS d'une part, et par l'instrument LPMA/IASI embarqué sous ballon d'autre part, ont été utilisées pour tester la méthode et la valider avec d'autres mesures existantes (TOMS, sondes d'ozone).

Dans ce document, nous rappelons dans une première partie les principaux processus chimiques régissant la distribution de l'O₃ dans la troposphère. Les modèles de chimie-transport utilisés sont présentés ainsi que l'étude des variabilités globales de la colonne totale et la colonne troposphérique d'O₃. Nous présentons dans un deuxième chapitre les principes de la télédétection passive au nadir dans le domaine de l'IR ainsi qu'une brève description théorique des notions de problème direct et de problème inverse. Le dernier chapitre théorique est dédié à la description de la mission IASI et de son précurseur IMG.

Nous présentons ensuite les études de sensibilité menées sur des simulations de spectres IASI afin d'étudier les signatures spectrales de l'O₃ dans le domaine de mesure. Dans le cinquième chapitre, l'algorithme d'inversion développé et le module d'analyse d'erreur associé sont décrits et les performances atteintes sont évaluées [Turquety *et al.*, 2002a; Turquety *et al.*, 2003]. La validation des méthodes développées, reposant sur l'application de l'algorithme d'inversion aux données réelles IMG et LPMA/IASI, est présentée dans le sixième chapitre. Les colonnes d'O₃ restituées sont comparées à l'O₃ fourni par des sondes d'ozone et par l'instrument TOMS/ADEOS [Turquety *et al.*, 2002b]. Une analyse plus précise des colonnes troposphériques est réalisée afin de tester la cohérence des distributions restituées avec notre connaissance des différents processus déduite des données globales disponibles (distributions de précurseurs, inventaires d'émissions, champs de vents, *etc.*) Cette première analyse nous permet d'autre part de cadrer les travaux qui devront être réalisés pour une exploitation optimale des observations.

Enfin, le dernier chapitre, plus prospectif, présente les études du contenu en information des mesures IR réalisées pour l'O₃ mais aussi pour le CO et le CH₄ en considérant différentes caractéristiques instrumentales dans le cadre de la définition du futur instrument géostationnaire Post-MSG [Clerbaux *et al.*, 2003b].

Chapitre 1

L’ozone troposphérique

Hormis la vapeur d’eau, l’ozone (O_3) troposphérique est actuellement reconnu comme le troisième gaz à effet de serre, après le dioxyde de carbone (CO_2) et le méthane (CH_4) [IPCC, 2001]. Il joue également un rôle déterminant dans le pouvoir oxydant de la troposphère. En effet, dans cette région de l’atmosphère, les principaux oxydants sont l’ozone ainsi que le radical hydroxyle (OH) et le peroxyde d’hydrogène (H_2O_2), issus de sa photodissociation [Thompson *et al.*, 1992].

La majeure partie de l’ozone total étant située dans la stratosphère (environ 90 %), la présence d’ozone dans la troposphère a longtemps été expliquée par les échanges de masses d’air entre la stratosphère et la troposphère. C’est seulement au début des années soixante-dix qu’a été démontré le rôle primordial de la production photochimique *in situ* d’ozone [Chameides and Walker, 1973; Crutzen, 1973]. L’évolution actuelle des quantités d’ozone dans la troposphère confirme l’importance de cette production photochimique, qui représente en réalité environ 75 % des sources [Lelieveld and Dentener, 2000]. Une augmentation très nette de la quantité d’ O_3 troposphérique, directement liée à l’industrialisation, est observée depuis les premières mesures au 19^e siècle. Elle est globalement estimée à 9 DU (environ 30 %) [IPCC, 2001].

L’objet de ce premier chapitre est d’exposer les différents processus connus expliquant la distribution de l’ozone dans la troposphère. Dans un premier temps, les principaux processus photochimiques de production et de destruction de l’ozone sont présentés dans le cas d’une atmosphère naturelle, puis d’une atmosphère polluée. Les sources et puits des principaux précurseurs de l’ozone sont ensuite détaillés, ainsi que l’estimation de leurs durées de vie.

L’analyse des distributions globales d’ozone nécessite d’autre part une bonne compréhension des processus de transport de polluants. Une brève description de la dynamique de la troposphère, en particulier des processus liés à la convection et aux instabilités baroclines, à la circulation générale et aux échanges de masses d’air entre la stratosphère et la troposphère, est présentée.

Enfin, le modèle 3-D de chimie-transport MOZART (Model for OZone And Related chemical Tracers) [Brasseur *et al.*, 1998; Hauglustaine *et al.*, 1998] et les climatologies de l’ozone UGAMP [Li and Shine, 1995], qui seront utilisés tout au long de cette thèse, sont rapidement décrits, en nous intéressant particulièrement à la variabilité de l’ozone à l’échelle globale (telle qu’elle est représentée dans les simulations).

1.1 Photochimie de l'ozone troposphérique

L'ozone est un constituant trace de l'atmosphère dont seulement environ 10% de la concentration totale est présente dans la troposphère. C'est un constituant secondaire produit par de nombreuses réactions photochimiques mettant en jeu un grand nombre de constituants, dits primaires, émis directement dans l'atmosphère. Ces précurseurs de l'ozone sont présents naturellement dans la troposphère mais sont aussi le résultat de l'activité humaine.

Afin de mieux distinguer les processus naturels des processus anthropiques, nous étudions successivement le cas d'une atmosphère non polluée puis celui d'une atmosphère polluée, avant de nous intéresser aux différents régimes chimiques et aux sources et puits des précurseurs de l'ozone.

Ces parties théoriques sont basées sur les ouvrages de l'*Académie des Sciences* [1993] et de *Brasseur* [1999].

1.1.1 Cas d'une atmosphère naturelle

Production d'ozone

Le seul processus chimique de formation de l'ozone est l'oxydation de l'oxygène moléculaire (O_2) en présence d'un troisième composé. Cette réaction nécessite la présence dans la troposphère d'oxygène atomique (O), obtenu par photodissociation du dioxyde d'azote (NO_2) à des longueurs d'onde inférieures à 400 nm (donne de l'oxygène atomique dans l'état fondamental 3P). Ainsi :



et



Cette dernière réaction est très rapide : $O(^3P)$ a une durée de vie de quelques secondes seulement. Le monoxyde d'azote (NO) réagit également très rapidement avec l'ozone.



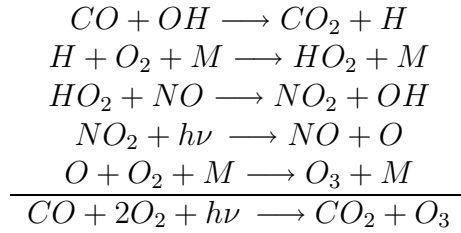
Les oxydes d'azote présents dans l'atmosphère sont quantifiés par la concentration en NO_x regroupant les concentrations en NO et en NO_2 , espèces fortement couplées du fait de la rapidité de la réaction 1.3.

Les trois équations précédentes conduisent à un équilibre photochimique, qui explique la présence d' O_3 . Pour qu'il y ait production nette d' O_3 , NO doit réagir avec un autre constituant en priorité, et être converti en NO_2 sans perte d' O_3 . Cette conversion est réalisée grâce aux radicaux hydroperoxyde (HO_2) et méthylperoxyde (CH_3O_2), issus de l'oxydation du CH_4 et du monoxyde de carbone (CO) :

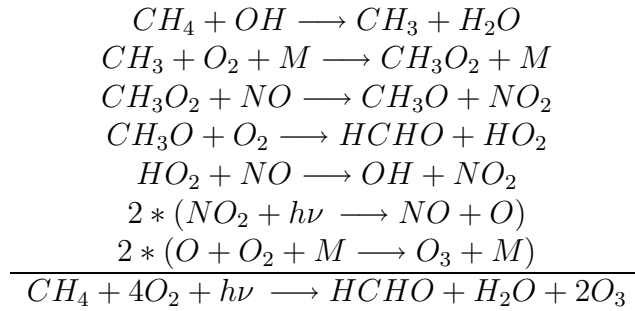


Pour que ces radicaux réagissent préférentiellement avec NO (plutôt qu'avec l' O_3), le rapport des concentrations de NO et d' O_3 doit être supérieur à $2 \cdot 10^{-4}$, ce qui revient à

une concentration en NO_x de l'ordre de 10-30 pptv (selon l'altitude et les concentrations des autres constituants atmosphériques). Différentes chaînes de réactions conduisent alors à la production d' O_3 :

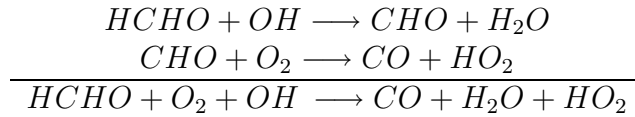


et

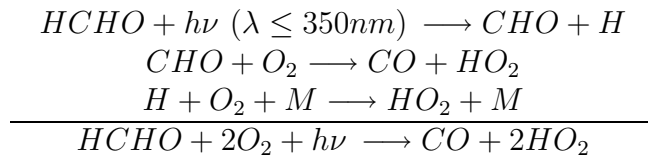


Ce dernier cycle peut être généralisé à l'ensemble des hydrocarbures.

Le formaldéhyde (HCHO) formé peut à son tour réagir avec OH ou être photodissocié pour former du CO et du radical HO_2 :

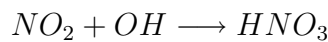


ou



Les radicaux HO_2 formés peuvent ensuite réagir avec NO pour former du NO_2 (réaction 1.4) et conduire à la production d' O_3 (réactions 1.1 et 1.2).

Ainsi, pour une molécule de CO oxydée, une molécule d' O_3 est produite et, pour une molécule de CH_4 oxydée, en moyenne 3,5 molécules d' O_3 sont produites, dont 1,5 proviennent de la destruction de la molécule de formaldéhyde. La présence d'oxydes d'azote et de CO ou d'hydrocarbures permet ainsi une production nette d' O_3 dans la troposphère. En revanche, présents dans des quantités trop importantes (supérieures à quelques ppb), les NO_x peuvent devenir des inhibiteurs de la production d' O_3 . La réaction avec OH conduisant à la formation d'acide nitrique constitue le principal puits des NO_x :

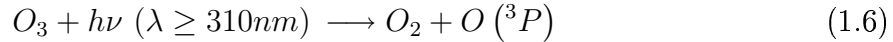


Un excès de NO_x diminue donc la production d' O_3 en constituant un puits important de HO_x . D'autre part, l' O_3 formé par photodissociation de NO_2 réagit rapidement avec l'excès de NO (réaction 1.3).

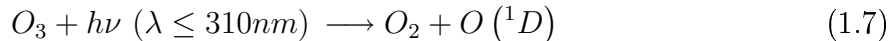
Destruction d'ozone

Les deux principaux mécanismes de destruction de l'ozone sont sa photodissociation et les réactions d'oxydation des hydrocarbures en l'absence d'oxydes d'azote.

La photodissociation de l'ozone dans la troposphère est réalisée pour un rayonnement à des longueurs d'onde supérieures à 310 nm (bande de Huggins) ou inférieures à 310 nm (bande de Hartley) :



Cette réaction peut ensuite conduire à la formation de O_3 car la réaction 1.2 est très rapide. Pour des longueurs d'onde inférieures à 310 nm, la réaction donne de l'oxygène atomique dans l'état excité ($O(^1D)$) :

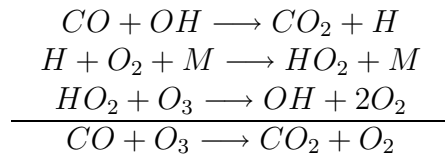


et

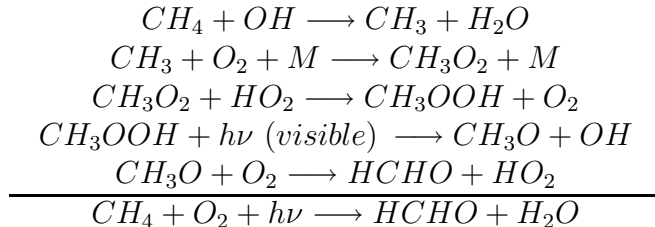


On a alors perte de O_3 et production de OH.

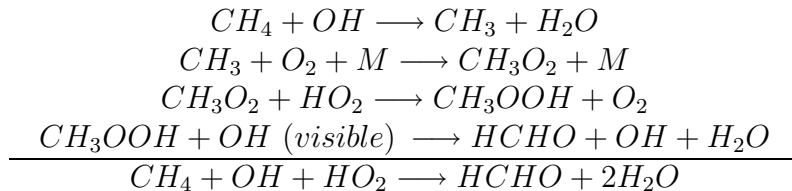
Il y aura également destruction d'ozone lors de la réaction de OH avec CH_4 et CO pour des concentrations de NO faibles. On a en effet alors les chaînes de réactions suivantes :



et



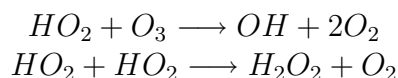
ou



suivant que le peroxyde de méthyle (CH_3OOH) est photodissocié ou oxydé. Il peut également être éliminé par dissolution dans les nuages.

Le bilan de ces réactions est une destruction d' O_3 . L'oxydation d'une molécule de CO s'accompagne de la destruction d'une molécule d' O_3 . Pour de faibles concentrations d' O_3 et de NO_x , il y a accumulation de HO_2 et l'oxydation du CH_4 conduit à la formation de formaldéhyde et d'eau sans consommation d' O_3 .

D'autre part, le HCHO formé conduit à la formation de HO_2 , qui peut conduire à la destruction d' O_3 ou à la formation de peroxyde d'hydrogène (H_2O_2) :



Le peroxyde d'hydrogène H_2O_2 peut ensuite être photodissocié et conduire à la formation de radicaux OH, réagir avec le radical OH pour former de l'eau ou être lessivé par les pluies. On a, dans tous ces cas, destruction de radicaux HO_x ($OH+HO_2$), ce qui aura une influence indirecte sur l' O_3 .

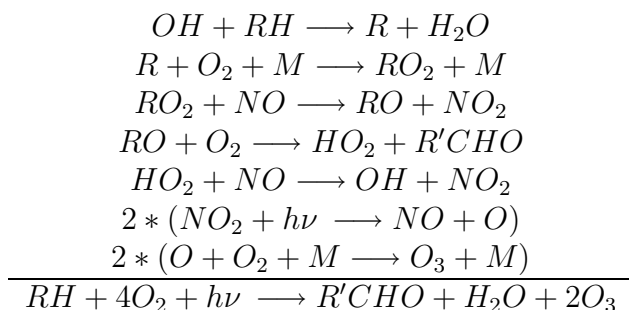
Un autre processus de destruction d'ozone important dans la couche limite est le dépôt sec à la surface, entraînant soit une décomposition thermodynamique, catalysée par les surfaces, dont le bilan s'écrit $2O_3 \longrightarrow 3O_2$, soit une absorption de l'ozone par la végétation, celle-ci étant fortement dépendante du type de plante et de son activité métabolique.

1.1.2 Cas d'une atmosphère polluée

Nous n'allons pas traiter cette partie en détail en raison de la complexité du problème, mais seulement donner les processus principaux.

Aux réactions précédentes doivent s'ajouter les réactions mettant en jeu les hydrocarbures autres que le méthane regroupés sous le nom d'hydrocarbures non-méthaniques (HCNM), incluant l'isoprène et les monoterpènes, émis par la végétation, les alcanes, les alcènes, les alcynes, les composés aromatiques et hydrogénés, *etc.*) dont les concentrations sont importantes dans les zones polluées et au-dessus des forêts.

Ces réactions peuvent être généralisées en notant RH les HCNM, et R'CHO les composés carbonylés, avec R équivalent à R'CH₂ :



Les composés carbonylés peuvent alors subir d'autres réactions photochimiques produisant des radicaux hydrogénés ou organiques qui à leur tour produiront de l'ozone. Les HCNM et les HCNM oxygénés (par exemple les alcools, les aldéhydes ou les acides organiques) sont regroupés dans la famille des composés organiques volatiles (COV).

Dans les régions non-polluées, les précurseurs de l'ozone sont principalement CH₄ et CO en présence d'oxydes d'azote. Dans les zones polluées, il faut également prendre en compte les COV qui sont présents dans la troposphère naturelle mais dont la concentration est fortement augmentée dans un environnement pollué, devenant alors des précurseurs non-négligeables de l'ozone.

1.1.3 Les régimes chimiques

Une quantité seuil d'oxydes d'azote est nécessaire pour obtenir une production nette d'ozone. Ce seuil est estimé à 30 ppt dans la basse troposphère [Brasseur *et al.*, 1999].

Cependant, comme nous l'avons noté dans les paragraphes précédents, des quantités trop importantes de NO_x entraînent une destruction nette d'ozone (réaction 1.3 dominante).

Plusieurs régimes chimiques peuvent être définis en fonction du niveau de NO_x :

- dans le cas d'un régime NO_x limité, une augmentation des NO_x implique une augmentation de la production d'ozone ;
- dans le cas d'un régime NO_x saturé (ou COV limité), une augmentation des NO_x implique une diminution de la production d'ozone.

Dans la troposphère non-polluée, les précurseurs de l'ozone sont émis en faible quantité ou issus du transport longue distance de masses d'air (depuis des régions d'émission). On se trouve alors principalement dans un régime NO_x limité. C'est ce régime qui est prédominant à l'échelle de la planète.

En zone urbaine, en revanche, les émissions de précurseurs sont importantes et les NO_x et les COV sont présents en grande quantité. La production nette d' O_3 dépend alors du rapport NO_x/COV . Un régime COV limité peut se rencontrer dans les régions extrêmement polluées dans la couche limite sous certaines conditions météorologiques (conditions estivales). Ainsi, en été, on se trouve fréquemment dans des situations où les quantités de NO_x sont trop importantes en zone urbaine pour avoir une production d' O_3 . C'est alors dans le vent des agglomérations, dans les zones rurales situées dans le panache de pollution, qu'une forte production d' O_3 est observée. Lors du déplacement des masses d'air, la diminution des concentrations de NO_x entraîne, en effet, une diminution de la destruction de l' O_3 par réaction avec NO, alors que l'ensemble des autres réactions se poursuit. Le rapport NO_x/COV sera donc très important pour les études de la composition chimique de l'atmosphère à des échelles régionales.

1.1.4 Sources et puits des principaux précurseurs de l'ozone

L'étude du bilan de l'ozone nécessite une bonne connaissance des zones d'émission de ses précurseurs. Comme nous l'avons vu précédemment, les principaux précurseurs de l'ozone sont le méthane, le monoxyde de carbone, les oxydes d'azote et, principalement dans les zones polluées, les HCNM.

Le tableau 1.1 résume les différentes sources de précurseurs, ainsi que les amplitudes des émissions associées, estimées à partir d'inventaires d'émissions [WMO, 1999]. Même si la nature des différentes sources est bien connue, leurs amplitudes comportent de fortes incertitudes, comme cela est indiqué dans le tableau 1.1. De plus en plus de travaux montrent la possibilité d'optimiser l'estimation des sources de polluants atmosphériques en utilisant des mesures de concentration de ces espèces par modélisation inverse (par exemple *Pétron et al.*, [2002], *Palmer et al.*, [2003], *Martin et al.*, [2003]). Les chiffres présentés donnent cependant une bonne approximation de l'ordre de grandeur des émissions pour les différentes sources.

Le bilan total montre que les émissions de CO sont les plus importantes. Elles sont principalement le résultat de l'activité humaine avec la combustion incomplète des carburants fossiles et la combustion de la biomasse (les feux de forêt ne représentant qu'un petit pourcentage de ces émissions, le reste étant dû aux feux de savane et agricoles), les émissions par les végétaux et les océans sont beaucoup plus faibles. Les concentrations de CO seront donc importantes dans les régions industrialisées, c'est-à-dire principalement dans l'hémisphère nord, et dans les régions tropicales. Il faut noter que ce tableau omet les sources secondaires liées à l'oxydation du CH_4 et des HCNM qui représentent pourtant

SOURCES	CH ₄	CO	HCNM	NO _x
Combustibles fossiles	110 (65-155)	500 (300-900)	70 (60-100)	22 (20-24)
Avions				0.5 (0.2-1)
Combustion de la biomasse	40 (10-70)	500 (400-700)	40 (30-90)	8 (3-13)
Végétation		100 (60-160)	400 (230-1150)	
Sols				7 (5-12)
Éclairs				5 (2-20)
Fermentation entérique	85 (60-105)			
Rizières	80 (30-120)			
Déchets animaux	30 (15-45)			
Décharges	40 (20-60)			
Oxydation du NH ₃				0.9 (0-1.6)
Stratosphère				0.6 (0.4-1)
Déchets domestiques	25 (20-30)			
Terres inondées	145 (115-175)			
Océans	10 (5-15)	50 (20-200)	50 (20-150)	
Eaux douces	5 (1-10)			
Sources géologiques	10 (5-15)			
Termites	20 (1-40)			
TOTAL	600 (520-680)	1150 (780-1960)	560 (340-1490)	44 (30-73)

TAB. 1.1 – *Émissions estimées des précurseurs de l'ozone en Tg/an. Les incertitudes sont indiquées entre parenthèses [WMO, 1999].*

des sources non-négligeables (elles sont estimées à respectivement 400-800 Tg et 200-600 Tg).

Les sources de méthane sont plus variées. Le méthane est naturellement produit par la décomposition de la matière organique dans des conditions anaérobies, c'est-à-dire en l'absence d'oxygène, ce qui regroupe les rizières, les surfaces inondées, *etc.* Il est aussi produit par l'activité microbienne dans l'estomac des ruminants et de certains insectes (termites). En dehors de l'agriculture, l'activité humaine produit du CH_4 par la combustion fossile, de déchets et de biomasse, et les pertes de gaz naturel.

Les hydrocarbures non méthaniques sont produits majoritairement naturellement par la végétation et par les océans mais ces émissions sont localisées. Les sources anthropiques liées à la combustion de biomasse et de combustibles fossiles sont significatives dans les zones polluées.

Les sources de NO_x les plus importantes étant l'utilisation de combustibles fossiles et la combustion de la biomasse, il est clair qu'elles sont principalement anthropiques. Les sols, les éclairs et le transport depuis la stratosphère ne représentent qu'une dizaine de Tg de NO_x par an. Les émissions par les avions restent faibles mais sont en constante augmentation depuis les années 1970 (les avions émettent également du CO et des HCNM mais dans des proportions très faibles par rapport aux émissions provenant des autres sources).

Les puits principaux, pour tous les précurseurs, sont la réaction avec le radical OH et, dans une moindre mesure, les pertes vers la stratosphère et le dépôt au sol.

1.1.5 Durées de vie caractéristiques dans la troposphère

Le bilan d'un gaz trace dépend de trois quantités : sa source globale, son puits global et sa charge atmosphérique [IPCC, 2001]. Celle-ci est définie comme la masse totale du gaz intégrée sur l'atmosphère et les réservoirs correspondants, c'est-à-dire principalement la troposphère et la stratosphère. La charge atmosphérique est généralement déduite des mesures disponibles. Elle est cependant très difficile à estimer avec précision pour les espèces fortement variables comme l' O_3 troposphérique et les NO_x .

Le temps de vie atmosphérique global caractérise le temps nécessaire au renouvellement de la charge atmosphérique totale d'un gaz trace. Il est défini comme cette charge atmosphérique (en Tg) divisée par le puits global moyen (en Tg/an) pour un gaz dans un état stable [IPCC, 2001]. Un corollaire à cette définition est que, pour un gaz trace dans un état stable, sa charge globale est égale au produit de sa durée de vie par ses émissions.

Pour les polluants dont les sources et puits varient fortement dans le temps et l'espace, une durée de vie unique ne peut être calculée : elle devra être spécifiée en fonction de la localisation, de l'altitude et de la période considérées.

D'après les estimations actuelles [IPCC, 2001], la durée de vie globale de l' O_3 troposphérique varie entre 0.01 et 0.05 an. Elle va de quelques jours à quelques semaines en été et atteint plus de 3 mois aux moyennes latitudes en hiver. En hiver, l'ozone pourra donc être transporté sur la plupart des hautes et moyennes latitudes. En été, sa distribution ne sera que régionale dans la couche limite (augmentation des pertes dans la couche limite due au dépôt en surface, particulièrement au-dessus des continents) mais elle pourra être influencée par des échelles plus importantes dans la troposphère libre.

Le CH_4 est un gaz à effet de serre stable. Sa durée de vie est estimée à plus de 8 ans. Ainsi, bien que ses sources soient très variables dans le temps et l'espace, le CH_4 pourra

être transporté dans la troposphère, permettant un mélange important à l'échelle globale.

Plus réactif, le CO a une durée de vie beaucoup plus courte, entre 0.08 et 0.25 an. Sa distribution sera marquée par les régions sources, même si le transport reste important, permettant l'observation de grands panaches de pollution dans le vent des régions sources.

La durée de vie des NO_x troposphériques varie entre moins de 0.01 ans et 0.03 ans. Elle est localement inférieure à 1 jour dans la basse troposphère mais supérieure à 5 jours dans la haute troposphère. Sa distribution sera donc très variable et directement caractéristique des régions sources.

Les durées de vie des HCNM varient de quelques heures à quelques mois suivant le composé considéré. Leur influence sera donc beaucoup plus locale que celle du méthane ou du monoxyde de carbone qui ont des durées de vie plus longues.

1.2 Transport dans la troposphère

Les contrastes thermiques liés à la présence de la surface de la Terre et à l'intensité du rayonnement solaire et les fortes concentrations de vapeur d'eau sont à l'origine d'une forte instabilité de la troposphère qui va être continuellement compensée par un brassage des masses d'air. De puissants mouvements d'advection verticaux et horizontaux se mettent en place, sur des échelles spatio-temporelles plus ou moins grandes.

De nombreuses études basées sur l'analyse d'observations ont mis en évidence l'importance du transport dans l'équilibre chimique de l'atmosphère : un grand nombre de composés chimiques peuvent être détectés loin de leur source. Une pollution régionale pourra avoir un effet sur la composition chimique de l'atmosphère globale et sur le climat (par exemple *Bey et al.* [1999], *Stohl et Trickl* [1999], *Wild et al.* [2001]), *Stohl et al.* [2002]), qui pourront en retour affecter la qualité de l'air à la surface (par exemple *Jacob et al.* [1999], *Jaffe et al.* [1999], *Li et al.* [2002]). Il est donc essentiel pour une étude de la composition de la troposphère de bien comprendre les processus dynamiques en jeu.

Le but de cette partie est de présenter une vue d'ensemble des principaux processus de transport dans la troposphère. Après un résumé des processus de transport à moyenne échelle puis de la circulation générale troposphérique, nous décrirons rapidement les échanges entre la couche limite atmosphérique, influencée par la surface, et la troposphère libre, ainsi que les échanges entre la troposphère et la stratosphère.

Une description plus complète des processus est disponible dans les ouvrages de *Palmén et Newton* [1969], *Holton* [1992], résumée dans *Brasseur* [1999].

1.2.1 Convection et instabilité barocline

La surface de la Terre absorbe le rayonnement solaire de manière beaucoup plus efficace que l'atmosphère. Le réchauffement important de la surface et le refroidissement radiatif de la moyenne et de la haute troposphère constituent un forçage radiatif important qui déstabilise la troposphère. Afin de rétablir un équilibre, des processus convectifs se mettent en place : une masse d'air chauffée devient plus légère que son environnement et s'élève. Au cours de ce mouvement ascendant, l'air se détend sous l'effet de la diminution de pression et se refroidit. Le mouvement se poursuit jusqu'à ce que la température de la masse d'air ait atteint celle du milieu environnant. Dans le cas d'une masse d'air plus froide que l'air ambiant, l'air plus lourd va descendre, se comprimer et se réchauffer dans un

mouvement subsident. L'ampleur du mouvement dépendra donc de l'échauffement de l'air au départ. Ce phénomène de convection est fortement accentué par la présence de vapeur d'eau. Lorsque des masses d'air humide s'élèvent, la condensation de la vapeur d'eau libère de la chaleur latente qui ralentit le refroidissement et augmente ainsi l'amplitude du mouvement vertical. Des nuages, appelés nuages convectifs, seront donc associés au mouvement de convection. En tant que source de chaleur interne, la condensation peut également être à l'origine de la convection (c'est notamment le cas lorsqu'une masse d'air est forcée vers le haut, par exemple par la présence de massifs montagneux).

La convection peut se produire sur des échelles de quelques km^2 à plusieurs milliers de km^2 , et peut s'étendre de la surface de la Terre jusqu'à la tropopause. Elle est généralement caractérisée par de petites régions de mouvements ascendants et de grandes régions de mouvements subsidents compensatoires dans l'environnement du nuage. Dans les tropiques, le mélange est plus global puisqu'une partie de l'air forcé vers le haut voyage vers le nord pour devenir une partie de la cellule de Hadley, comme nous allons le voir dans la partie suivante.

La convection est donc un processus de mélange des masses d'air troposphériques très efficace, permettant le transport des constituants traces. Elle peut également engendrer une modification de la composition chimique des masses d'air par la chimie hétérogène en phase aqueuse dans les nuages.

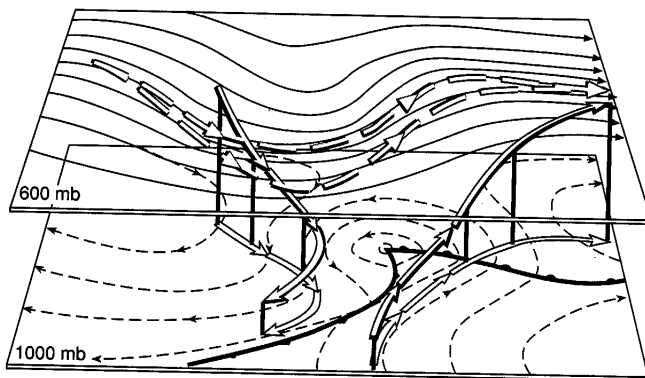


FIG. 1.1 – Schéma de la circulation des masses d'air par rapport aux perturbations baroclines aux moyennes latitudes (Brasseur, [1999], d'après Palmén and Newton [1969]).

Outre cette instabilité liée au gradient vertical de température (gradient de température potentielle négatif), une situation instable (instabilité barocline) peut également résulter d'un gradient latitudinal de température trop important. Le gradient de température équateur-pôle, lié à un excès de chaleur dans les tropiques par rapport aux pôles, entraîne la formation d'une circulation des masses d'air à grande échelle, comme nous le verrons dans le paragraphe suivant. Lorsque ce gradient devient trop important, l'atmosphère se trouve dans un état d'instabilité barocline et la circulation est modifiée afin de transporter l'excès d'énergie depuis les régions d'excès vers les régions de déficit. L'instabilité permet le développement d'ondes atmosphériques, qui se développent principalement aux moyennes latitudes des deux hémisphères. La perturbation barocline de l'atmosphère modifie la circulation des masses d'air, avec des perturbations de type ondulatoire dans la moyenne troposphère et la formation de centres de basses pressions

fermés à la surface, avec les fronts associés (figure 1.1). Les mouvements verticaux sont aussi perturbés par des mouvements de subsidence à l'arrière des fronts froids de surface, et des mouvements d'ascendance au niveau des fronts chauds. Ces processus de transport vertical non-convectif sont plus lents que les processus convectifs mais contribuent tout de même fortement au mélange des masses d'air, notamment aux moyennes latitudes. Plus globalement, ils entraînent un écoulement d'air froid vers l'équateur et vers le bas, et d'air chaud vers le pôle et vers le haut.

1.2.2 La circulation générale troposphérique

Les régions tropicales reçoivent une quantité beaucoup plus importante de rayonnement solaire que les latitudes plus élevées du fait de leur meilleure exposition. On a un excès de chaleur aux basses latitudes et un déficit aux hautes latitudes, et un transfert de chaleur des tropiques vers les pôles est donc nécessaire pour rétablir l'équilibre.

Cette circulation est réalisée grâce à des cellules : l'air chaud monte au niveau des tropiques, s'écoule vers les pôles, refroidit et redescend. Une seule cellule géante serait cependant instable. Une circulation plus complexe se met en place en accord avec la conservation du moment cinétique et la conservation de la chaleur (figure 1.2).

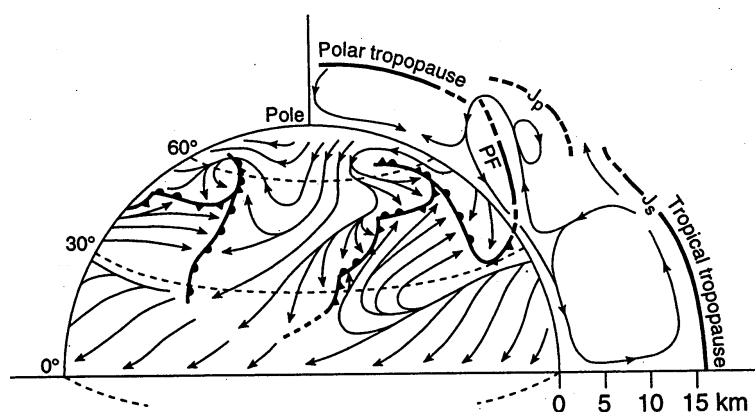


FIG. 1.2 – Schéma de la circulation générale dans la troposphère. Les flèches représentent les vents de surface typiques de l'hémisphère nord. Les fronts chauds sont représentés par des lignes épaisses avec des demi-cercles et les fronts froids par des lignes épaisses avec des triangles. La partie de droite représente la circulation dans un plan altitude-latitude où J_p représente le jet polaire, J_s le jet subtropical et PF le front polaire [Brasseur et al., 1999].

Dans l'hémisphères Nord, la circulation est caractérisée par une cellule directe jusqu'à 30° (cellule de Hadley), puis de 30° à 60°, la circulation se fait dans le sens inverse avec une cellule indirecte (cellule de Ferrel) et enfin une cellule directe transporte les masses d'air au-dessus de 60° (cellule polaire). La circulation est symétrique dans l'hémisphère Sud.

Au niveau des tropiques, associée à la cellule de Hadley, se trouve une zone de forte convergence des masses d'air tropical humide (Inter-Tropical Convergence Zone ou ITCZ). L'ITCZ se situe d'un côté ou de l'autre de l'équateur suivant la saison, permettant des échanges inter-hémisphériques de masses d'air avec des constantes de temps de l'ordre d'un an (les constantes de temps caractérisant les échanges intra-hémisphériques étant de

l'ordre de quelques mois seulement) [Brasseur et al., 1999]. Les vents de surface associés à la branche descendante de la cellule de Hadley sont déviés vers l'est par la force de Coriolis. La circulation en surface dans les subtropiques est donc caractérisée par des vents vers l'équateur et vers l'est, appelés les alizés.

À des latitudes plus élevées, on trouve également des zones de convergence de masses d'air ayant différentes caractéristiques du fait de leurs origines distinctes. On se trouve ainsi dans des régions de transition localisées où les propriétés du fluide varient beaucoup plus rapidement : les fronts.

Les masses d'air adjacentes ont généralement des densités différentes et le front est donc accompagné d'un gradient de pression très important. Sous l'action de la force de Coriolis, un écoulement se met en place. Cet écoulement reste localisé au niveau de la forte valeur du gradient de pression, donnant à l'écoulement la forme d'un "jet".

Le jet le plus important dans l'atmosphère est le jet polaire localisé autour de 45°N , à la limite entre les masses d'air d'origine polaire et les masses d'air d'origine subtropicale (figure 1.2).

Comme exposé rapidement dans la partie précédente, la circulation moyenne est également influencée par la présence d'ondes baroclines qui vont interagir fortement avec le courant jet. Ces perturbations vont entraîner une grande ondulation du jet, quasi-permanente, correspondant aux grands thalwegs situés aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord. Pour caractériser plus exactement la circulation dans la troposphère il faut aussi prendre en compte les ondes de basses fréquences correspondant aux régimes de temps et les ondes de hautes fréquences qui correspondent aux perturbations atmosphériques aux échelles de temps plus courtes. Les vents de surface dans les régions de moyennes latitudes sont donc très variables, avec différents régimes de vent séparés par des fronts froids et des fronts chauds associés aux perturbations baroclines.

1.2.3 La couche limite

Comme nous l'avons vu, la surface de la Terre joue un rôle déterminant dans l'équilibre de la troposphère. En tant que source et puits important de chaleur et de vapeur d'eau, elle est à l'origine de nombreux processus convectifs et d'instabilité barocline de la troposphère. Elle oppose également une résistance frictionnelle à la circulation atmosphérique, et émet et absorbe un grand nombre de constituants traces de l'atmosphère. La couche de l'atmosphère directement affectée par la surface de la Terre est appelée couche limite atmosphérique (CLA).

Sa profondeur est liée à la structure de l'atmosphère et aux flux de chaleur et de vapeur d'eau en surface et peut aller typiquement de 100 m à quelques km. Les frottements (impliquant un cisaillement vertical du vent) et le réchauffement de la surface continentale (gradient vertical de température négatif) rendent cette région très instable et constituent donc une source importante de turbulences. Les mouvements turbulents permettent un transfert de chaleur et de composés chimiques depuis la surface très efficace, conduisant à une homogénéisation rapide de la CLA.

Au sommet de la CLA, l'inversion de température, et donc la forte stabilité de l'atmosphère (gradient de température positif), constitue un couvercle aux mouvements verticaux turbulents, ralentissant significativement l'échange de masses d'air avec la troposphère libre (et donc le transport des espèces chimiques émises dans la CLA vers la troposphère libre). Le transport entre la CLA et la troposphère libre se produit générale-

ment sur des échelles de temps allant de quelques heures à quelques jours, même si lors de mouvements convectifs importants, une ventilation complète de la CLA peut se faire en moins d'une heure [Brasseur et al., 1999].

1.2.4 Les échanges stratosphère-troposphère

Les échanges de masses d'air entre la stratosphère et la troposphère constituent un élément essentiel de la circulation atmosphérique et impliquent des interactions sur des échelles de temps très variées. Ils ont donc un impact très important sur l'équilibre photochimique des deux régions. En particulier, ses échanges permettent le transport des composés chimiques ayant leur source dans la CLA ou la troposphère libre vers la stratosphère, ainsi que l'intrusion d'ozone stratosphérique dans la troposphère.

L'intrusion d'air stratosphérique riche en ozone a un impact important sur la capacité oxydante de la troposphère puisque jusque environ 25 % de l'ozone troposphérique pourrait être considéré d'origine stratosphérique [Lelieveld and Dentener, 2000].

Afin de bien comprendre ces échanges, une description rapide de la dynamique stratosphérique est nécessaire.

Dynamique de la stratosphère

Le gradient de température dans la stratosphère est fortement lié à la distribution de l'ozone, celui-ci étant le principal absorbant de rayonnement UV dans la stratosphère. L'ozone stratosphérique est formé par la photolyse de O_2 par le rayonnement UV ($\lambda < 240$ nm), principalement dans la stratosphère tropicale.

Dans la basse stratosphère, le gradient thermique va des tropiques vers les pôles, alors qu'il va du pôle d'été au pôle d'hiver au-dessus de 25-30 km. Ainsi, dans la basse stratosphère, la circulation se caractérise par une zone d'ascendance au niveau des tropiques et de subsidence au niveau des pôles, avec une subsidence maximale en hiver, alors qu'elle ne présente qu'une seule boucle dans la haute stratosphère, allant du pôle d'été au pôle d'hiver. Dans les zones d'ascendance, des masses d'air provenant d'altitudes plus basses et pauvres en ozone montent alors que dans les zones de subsidence, les masses d'air descendantes, provenant d'altitudes plus élevées, sont plus riches en ozone. Le gradient thermique implique également de forts vents zonaux (relation du vent thermique).

Malgré ce fort gradient, la circulation moyenne, dite de Brewer-Dobson, est principalement régie par des perturbations ondulatoires d'origine troposphérique (d'ondes de Rossby en particulier, liées principalement aux contrastes Terre-mer et au relief) qui se propagent dans la stratosphère où elles déferlent, entraînant les vents d'ouest stratosphériques liés à la circulation générale.

En hiver, au niveau des pôles, le rayonnement solaire ne vient plus compenser le refroidissement de la stratosphère dû à l'émission dans l'infrarouge. Durant la nuit polaire, on a donc un gradient de température très élevé entre les pôles et les moyennes latitudes, ce qui entraîne l'accélération du jet polaire (jet zonal d'ouest) qui tourne autour d'une dépression centrée sur le pôle, le vortex. L'air stratosphérique se trouve alors confiné à l'intérieur du vortex. Dans l'hémisphère nord, l'intensité et la position du vortex dépendent fortement des ondes provenant de la troposphère, de fortes amplitudes dans cette région du fait des nombreux contrastes continents-océans et des grandes régions montagneuses.

Le vortex oscille alors fortement et il peut y avoir un échange de masses d'air avec les latitudes inférieures. Dans l'hémisphère sud, l'intensité du vortex est beaucoup plus forte.

Les processus d'échange

Une revue complète des processus d'échange est présentée par *Holton et al.* [1995]. Ils peuvent être représentés en termes de flux à travers la tropopause.

Le forçage de la circulation de Brewer-Dobson par les ondes induit le mouvement des masses d'air vers les pôles mais aussi un flux descendant vers les moyennes et hautes latitudes de la troposphère. L'équilibre des masses dans la stratosphère est maintenu par un mouvement ascendant à travers la tropopause tropicale.

La propagation d'ondes stratosphériques est plus efficace dans l'écoulement d'ouest pendant l'hiver. D'autre part, le forçage des ondes de Rossby est plus important dans l'hémisphère nord. Les échanges stratosphère-troposphère seront donc plus importants aux hautes et moyennes latitudes de l'hémisphère nord. Les changements saisonniers de la masse de la basse stratosphère entraînent également un transport. Au printemps, l'altitude de la tropopause augmente, entraînant de l'air stratosphérique dans la troposphère. L'effet combiné de ces processus implique que le transport vers le bas atteint un maximum à la fin de l'hiver et au début du printemps.

Des intrusions d'air stratosphérique dans la troposphère sont également associées à des foliations de tropopause au niveau du jet subtropical, dues à une distortion de la tropopause associée au développement de régimes de temps synoptiques (figure 1.1). Des masses d'air troposphériques sont également transportées vers la basse stratosphère par ce processus. Même si leur impact est plus local, ces événements sont fréquemment observés dans la basse stratosphère [*Kowol-Santen and Ancellet*, 2000; *Bradshaw et al.*, 2002].

1.3 Modélisation de l'ozone

Les modèles permettent de coupler les processus photochimiques et la dynamique et ainsi de simuler des situations réalistes pour lesquelles tous les paramètres sont connus et maîtrisés. Dans notre cas, les simulations nous ont permis d'acquérir une connaissance *a priori* validée du type de distributions d'ozone qu'un instrument embarqué sur satellite pourra observer. Celles-ci seront en particulier utilisées au cours des phases de développement de l'algorithme d'inversion de l'ozone à partir de mesures satellitaires.

Nous avons utilisé le modèle troposphérique de chimie-transport MOZART [*Brasseur et al.*, 1998; *Hauglustaine et al.*, 1998] complété par les climatologies de l'ozone UGAMP [*Li and Shine*, 1995] au-dessus de la tropopause afin d'obtenir des profils d'ozone complets (jusqu'à 100 km d'altitude, considéré comme le sommet de l'atmosphère). Nous appellerons les profils ainsi obtenus des "profils MOZART/climatologies".

Après une rapide présentation du modèle de chimie atmosphérique et des climatologies utilisés, les distributions d'ozone et leurs variabilités sont brièvement présentées.

1.3.1 Le modèle de chimie-transport MOZART

Le modèle de chimie-transport MOZART (Model for OZone And Related chemical Tracers) [*Brasseur et al.*, 1998; *Hauglustaine et al.*, 1998] permet le calcul de l'évolution

de 56 espèces chimiques de la surface jusqu'au milieu de la stratosphère (3 mbar ou 40 km environ).

Le modèle tient compte :

- des émissions des composés chimiques suivants : N_2O , CH_4 , HCNM , CO , NO_x , CH_2O , acétone
- du transport advectif
- du transport convectif
- des échanges dans la couche limite
- des réactions chimiques et photochimiques
- du dépôt à la surface
- du lessivage de 11 espèces solubles

La dynamique est simulée en mode “off line” par un modèle de circulation générale, simulation de 2 ans du CCM (Community Climate Model) du NCAR (National Center for Atmospheric Research), qui fournit au modèle MOZART les informations météorologiques pour des conditions typiques. Les variables dynamiques et les autres variables nécessaires pour le calcul du transport advectif et des échanges à plus petite échelle sont fournies toutes les 3 heures par le CCM. Durant ces périodes de 3 heures, ces données sont interpolées linéairement en fonction du temps.

Le calcul est effectué avec un pas de temps de 20 minutes pour les processus chimiques et le transport et la résolution spatiale est identique à celle du CCM, soit horizontalement, une résolution de $2.8^\circ \times 2.8^\circ$ correspondant à une grille numérique de 64 latitudes Gaussiennes et 128 longitudes équidistantes. Verticalement, le calcul est effectué sur 25 niveaux de la surface à 3 mbar (environ 40 km). Les conditions initiales sont déterminées par la simulation précédente.

L'évaluation des simulations du modèle [Hauglustaine *et al.*, 1998] a montré que l'ozone calculé est globalement en bon accord avec les observations. MOZART a cependant tendance à sous-estimer les concentrations d'ozone dans la troposphère libre.

1.3.2 Climatologie de l'ozone UGAMP

La climatologie de l'ozone UGAMP (UK Universities' Global Atmospheric Modelling Programme) a été réalisée à l'université de Reading dans le but d'améliorer la paramétrisation de l'ozone utilisée dans les modèles atmosphériques de l'UGAMP. C'est une distribution à 4 dimensions qui combine plusieurs ensembles d'observations [Li and Shine, 1995]. Les distributions incluent 5 années d'observations (1985-1989) avec un ensemble à 3 dimensions par mois. Malgré le peu de données disponibles dans certaines régions, la climatologie est réalisée sur une grille horizontale de $2.5^\circ \times 2.5^\circ$ et a donc une couverture globale. Elle est définie sur 47 niveaux verticaux (surfaces isobares) s'étendant de la surface à 0.0011 hPa.

La climatologie repose principalement sur les mesures satellitaires fournies par SBUV (Solar Backscattered UltraViolet) et SAGE-II (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment). Ces deux instruments mesurent des profils d'ozone dans la stratosphère. Les profils mesurés par l'instrument SME (Solar Mesosphere Explorer), entre environ 50 et 90 km d'altitude, ont été utilisés afin de compléter les mesures à haute altitude. D'autre part, les profils fournis par des sondes d'ozone et les colonnes totales fournies par TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) ont permis d'apporter une information sur les quantités d'ozone dans la troposphère.

Afin de construire une climatologie homogène, les mesures sont interpolées sur la grille adoptée puis combinées, chaque ensemble de mesures correspondant à une région verticale spécifique.

La qualité des climatologie a été vérifiée en les comparant à des mesures “originales”, qui n’ont pas été utilisées pour constituer la climatologie [Li and Shine, 1995].

1.3.3 Variabilité spatiale et temporelle de l’ozone

Colonne totale d’ozone

Pour chaque point de grille, la colonne totale est calculée en intégrant les profils MOZART/climatologies entre la surface et 100 km d’altitude. L’unité utilisée est l’unité Dobson ($1 \text{ DU} \simeq 2.69 \times 10^{16} \text{ molécules par cm}^2$)¹.

La figure 1.3 présente la distribution spatiale de la colonne totale sur une échelle globale pour le 15 de chaque mois. D’une manière générale, les colonnes calculées dans l’hémisphère nord atteignent des maxima plus élevés que celles calculées dans l’hémisphère sud.

Les concentrations d’ozone les plus faibles se situent généralement dans les régions tropicales, au-dessus de l’océan Pacifique (avec des colonnes totales inférieures à 290 DU), bien que des concentrations très faibles soient obtenues en septembre–octobre au-dessus de l’Antarctique. Les quantités les plus importantes sont obtenues dans l’hémisphère nord, au niveau des pôles avec des valeurs pouvant dépasser 550 DU. Les gradients latitudinaux les plus prononcés sont calculés aux latitudes subtropicales (20° – 40°).

Une variation saisonnière très nette est également obtenue : dans les deux hémisphères, les valeurs les plus fortes sont obtenues aux pôles en hiver avec un maximum en mars–avril dans l’hémisphère nord et en juillet dans l’hémisphère sud, et les valeurs les plus faibles sont obtenues en août–septembre dans l’hémisphère nord et en septembre–octobre dans l’hémisphère sud (en Antarctique).

90 % de l’ozone présent dans l’atmosphère se trouvant dans la stratosphère, la colonne totale est influencée principalement par la distribution et l’évolution de l’ozone dans la stratosphère (représentées par les climatologies UGAMP). Pour des altitudes supérieures à 40 km, l’ozone a une durée de vie allant de quelques heures à la journée et sa distribution sera donc la conséquence de processus chimiques. La majeure partie de l’ozone se trouve cependant à des altitudes inférieures à 40 km, où l’ozone a une durée de vie assez longue, allant de quelques jours à plusieurs mois. La dynamique à grande échelle joue donc un rôle important dans la distribution des concentrations d’ozone à ces altitudes.

Les distributions observées sur les cartes présentent les caractéristiques de la circulation méridienne stratosphérique. Dans les zones d’ascendance, des masses d’air provenant d’altitudes plus basses et pauvres en ozone montent alors que dans les zones de subsidence, les masses d’air descendantes, provenant d’altitudes plus élevées, sont plus riches en ozone, ce qui explique les faibles colonnes tropicales et les fortes colonnes polaires observées sur les cartes. La circulation à grande échelle explique également les variations saisonnières observées : faibles colonnes aux hautes latitudes de l’hémisphère nord pendant l’hiver austral (diminution à partir du mois de mai et jusqu’en novembre) et fortes

¹1 DU correspond à une couche de 0.01 mm d’épaisseur dans les conditions standard de température et de pression (0°C , 1 atm) et est égal à $10^{-3} \times N_0$ molécules d’ O_3 par cm^2 , où N_0 est le nombre de Loschmidt, c’est-à-dire le nombre de molécules contenues dans 1 cm^3 de gaz (à 0°C et 1 atm), égal à $2.6867775 \times 10^{19} \text{ molécules/cm}^3$.

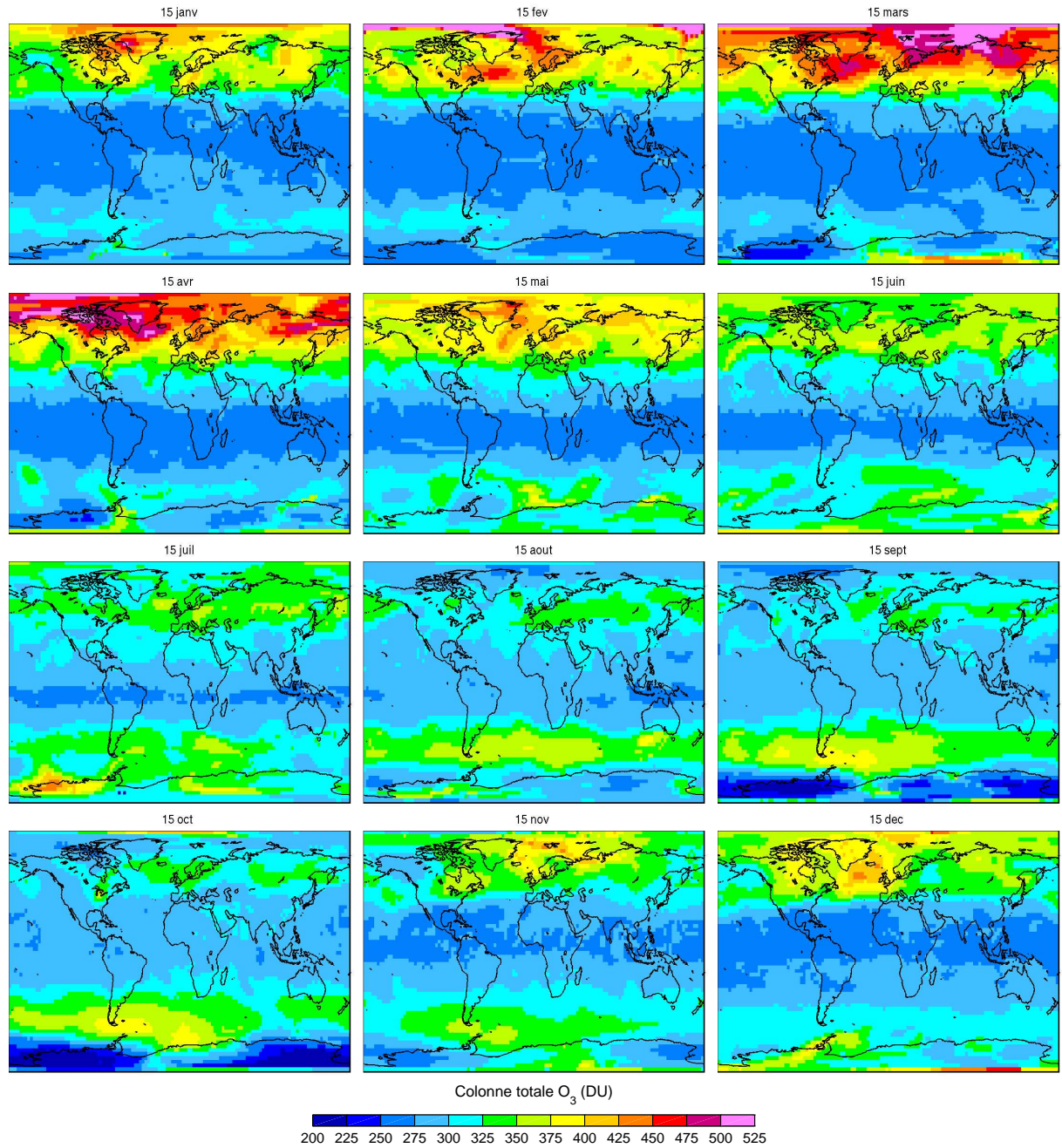


FIG. 1.3 – Distributions globales de la colonne totale d’ozone calculées à partir des profils MOZART, connectés à des climatologies au-dessus de la tropopause pour le 15^{ème} jour de chaque mois.

colonnes autour du pôle sud, et inversement fortes colonnes durant l’été austral au pôle nord.

D’autre part, en hiver durant la nuit polaire, le développement du vortex empêche les échanges de masses d’air avec les moyennes latitudes. Les températures peuvent atteindre des valeurs permettant la formation de nuages stratosphériques polaires. À la surface des cristaux de ces nuages, la chimie en phase hétérogène entraîne notamment l’activation des composés chlorés passifs présents dans la stratosphère. Au printemps, lors du retour du

rayonnement solaire aux hautes latitudes, les composés chlorés chimiquement actifs sont photodissociés, donnant du chlore atomique qui réagit très rapidement avec l'ozone pour former du monoxyde de chlore, dont le dimère pourra à son tour être photodissocié pour former du chlore, *etc.* Ces mécanismes de destruction de l'ozone polaire au printemps s'arrêtent lors du réchauffement stratosphérique final : lorsque la température aux moyennes latitudes augmente, l'intensité du gradient entre l'intérieur du vortex et les latitudes inférieures augmente aussi, jusqu'à ce que la circulation devienne instable. En quelques jours, l'air polaire est remplacé par de l'air plus chaud provenant des moyennes latitudes, ce qui permet les réactions de "désactivation" des composés chlorés.

Dans l'hémisphère sud, la nuit polaire s'étend de mai à juillet et le retour au mois d'août du rayonnement solaire s'accompagne d'une forte destruction de l'ozone avec un minimum de la colonne totale atteint en Antarctique aux mois de septembre–octobre. Le réchauffement final a lieu fin novembre, et on peut voir sur les cartes une légère augmentation de la colonne d'ozone à partir du mois de décembre. Ce phénomène est moins net dans l'hémisphère nord du fait de l'oscillation du vortex, celui-ci pouvant s'étendre jusqu'aux moyennes latitudes. Plusieurs phases de réchauffement peuvent avoir lieu au pôle durant un même hiver, limitant la formation de nuages stratosphériques polaires. D'autre part, l'hiver dans l'hémisphère nord est plus court. Sur les cartes calculées, la signature de la destruction de l'ozone au printemps au niveau des pôles est moins marquée en Arctique qu'en Antarctique.

Colonne troposphérique d'ozone

La colonne troposphérique est calculée en intégrant les profils MOZART de la surface jusqu'à la tropopause, elle-même déterminée à partir des profils de température comme l'altitude la plus basse pour laquelle le gradient de température est supérieur à -2 K par km [Hoinka, 1997] (ce gradient doit rester > -2 K/km pendant 2 km).

La figure 1.4 présente, pour le 15 de chaque mois, la distribution globale de la colonne partielle d'ozone dans la troposphère. Les cartes présentent les caractéristiques suivantes :

- les quantités les plus faibles sont observées aux moyennes et hautes latitudes dans l'hémisphère sud ;
- de faibles valeurs de colonne sont également observées au niveau des tropiques, au-dessus de l'océan Pacifique ;
- les colonnes les plus importantes sont observées aux moyennes et hautes latitudes dans l'hémisphère nord ;
- des valeurs particulièrement élevées se détachent au-dessus de l'est de l'Asie et de l'Amérique du Nord ainsi qu'au-dessus de l'Europe de l'Est et du Sud ;
- des valeurs relativement hautes sont également observées aux moyennes latitudes dans l'hémisphère sud, au sud de l'Afrique pendant le printemps et l'été austral, et au niveau de l'Afrique centrale aux mois d'avril et de mai ;
- les cartes mettent aussi en évidence des panaches qui peuvent s'expliquer par le transport de précurseurs de l'ozone ou de l'ozone lui-même dans les masses d'air (provenant de l'Asie, de l'Amérique du Nord et de l'Europe) ;
- on observe également, pour certains jours, des minima relatifs dans l'hémisphère nord au-dessus des grandes chaînes de montagne (Rocheuses à environ 110°W et l'Himalaya à environ 80°E).

Ces observations concordent avec les considérations précédentes sur le transport dans la

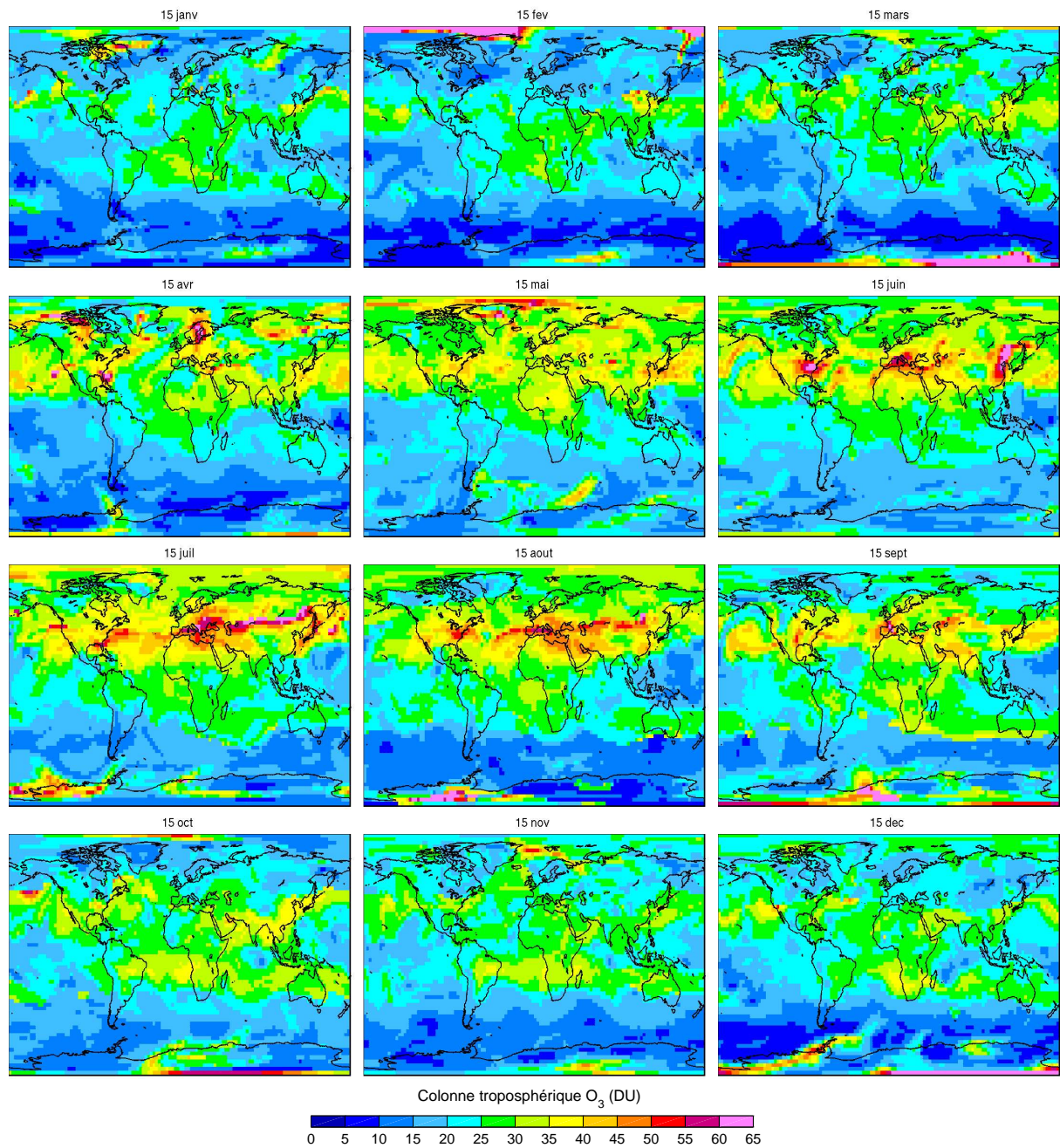


FIG. 1.4 – Distributions globales de la colonne troposphérique d'ozone calculées à partir des profils MOZART pour le 15^{ème} jour de chaque mois.

troposphère et les différentes sources de précurseurs de l'ozone (sections 1.1 et 1.2).

Les plus faibles concentrations observées au niveau des tropiques sont dues aux effets combinés du transport vertical, de la destruction photochimique d'ozone plus importante dans ces régions (exposition plus importante au rayonnement solaire et concentrations plus faibles de précurseurs de l'ozone, particulièrement au-dessus des océans) et de la faible influence de la source stratosphérique dans les régions tropicales.

Aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord, les fortes colonnes sont à relier aux émissions de précurseurs de l'ozone en surface, et donc à une production photochimique

d'ozone intense. Ces émissions sont plus importantes dans l'hémisphère nord que dans l'hémisphère sud en raison de la plus grande surface continentale accompagnée d'une population plus importante, d'une industrialisation et d'une agriculture intensives, entraînant des concentrations en polluants primaires plus fortes (oxydes d'azote, méthane et HCNM notamment).

Dans l'hémisphère sud, la présence de maxima relatifs est liée aux émissions de précurseurs de l'ozone par les feux de végétation (émissions importantes de CH_4 et de CO) nombreux en Afrique et Amérique de Sud [Fishman et al., 1990; Fishman et al., 1991; Fishman and Brakett, 1997]. Ces feux ont principalement lieu durant la saison sèche en hiver, soit généralement d'août à octobre au sud de l'équateur et de décembre à avril au nord de l'équateur. De fortes concentrations sont également présentes au-dessus de l'Atlantique et du Pacifique à ces périodes de l'année en raison du transport des masses d'air par des vents dominants d'ouest.

La durée de vie de l'ozone aux moyennes latitudes va de quelques semaines en été à plusieurs mois en hiver. Le transport d'ozone est donc efficace à ces latitudes, tout comme le transport de nombreux précurseurs de l'ozone, ce qui peut expliquer les panaches observés autour des zones de fortes concentrations. Ce transport s'effectue principalement vers l'est en suivant les courants jet aux moyennes latitudes et vers le sud-ouest dans l'hémisphère nord et le nord-est dans l'hémisphère sud en suivant les alizés dans les tropiques. Les échanges inter-hémisphériques se faisant avec des constantes de temps de l'ordre d'une année, il n'y aura généralement pas de transport d'ozone entre les deux hémisphères dans la troposphère.

Les maxima observés à l'est des continents asiatique et nord-américain peuvent être associés au transport de masses d'air riche en ozone depuis la stratosphère, très important en hiver et au printemps dans l'hémisphère nord (associé au déferlement d'ondes de Rossby). Ce sont cependant également des régions de fortes émissions de précurseurs et de forte production d'ozone.

Les minima relatifs au-dessus des massifs montagneux sont simplement dus à une diminution de la hauteur de la colonne d'air troposphérique par le relief.

Nous observons également sur les cartes une variation saisonnière de la colonne troposphérique d'ozone, en particulier dans l'hémisphère nord. En effet, quel que soit l'hémisphère considéré, les concentrations d'ozone atteignent un maximum au printemps, avec une augmentation supplémentaire en été dans l'hémisphère nord due à la production photochimique à partir de précurseurs d'origine anthropique. De forts maxima entre juin et septembre sont notamment observés à l'est de l'Amérique du Nord et de l'Asie ainsi qu'en Europe, en particulier au-dessus du bassin Méditerranéen.

Les minima observés en hiver sont dus au minimum de production photochimique d'ozone en cette saison, le rayonnement solaire incident étant moins important (la faible production de OH entraîne une inhibition de la photochimie dans la troposphère autant en ce qui concerne la production que la destruction, d'où le maximum de durée de vie de l'ozone en hiver, et la photodissociation du dioxyde d'azote plus faible diminue la production d'ozone).

Le maximum observé au printemps est traditionnellement attribué à la source stratosphérique mais on l'explique également par l'accumulation de précurseurs pendant l'hiver aux hautes latitudes et à la durée de vie allongée de l'ozone en cette saison, conduisant à une production massive au printemps. Ces dernières considérations ne sont pas contradictoires avec les maxima de l'hémisphère sud pendant le printemps austral qui

sont également d'origine anthropique (combustion de la biomasse).

Notons que les forts maxima de colonne troposphérique obtenus au niveau des pôles sont dûs à une erreur sur le calcul de la tropopause, difficile à déterminer dans ces régions.

Variabilités temporelles et spatiales

La variabilité spatiale et temporelle de l'O₃ a été estimée pour les colonnes totale et troposphérique en utilisant les profils d'O₃ pour le 15^{ème} jour de chaque mois. La variabilité correspond au changement des valeurs d'O₃ à une localisation fixée pendant toute l'année (variabilité temporelle) ou au cours d'une période de temps fixée (variabilité spatiale). Elle dépend donc directement de la durée de vie de l'O₃.

La variabilité temporelle de l'ozone peut être étudiée sur des échelles de temps allant du jour à la décennie [WMO, 1999]. Comme nous avons pu l'observer sur les simulations MOZART présentées dans les paragraphes précédents, elle est fortement influencée par la chimie de l'atmosphère, la circulation des masses d'air et les processus radiatifs régissant le bilan de l'ozone. Une variabilité inter-annuelle résulte d'autre part de l'influence d'événements tels que l'oscillation quasi-biennale, El Niño et La Niña, des activités volcaniques ou du cycle solaire. Ces phénomènes climatiques ont récemment pu être observés sur des mesures d'ozone [Chandra et al., 1998; Thompson et al., 1999; Chandra et al., 1999; Logan, 2003].

Nous nous limiterons ici à une étude de la variabilité saisonnière basée sur les profils d'O₃ MOZART/climatologies afin d'estimer l'ordre de grandeur des variations qu'un instrument devra détecter afin d'apporter une information utile à la compréhension du bilan de l'ozone [Clerboux et al., 1998].

La variabilité temporelle d'un paramètre x est évaluée en calculant la différence entre la valeur maximale et la valeur minimale rapportée à la valeur moyenne pour chaque point de grille i sur la période p considérée [Hadj-Lazaro, 1999] :

$$\frac{x_{\max} - x_{\min}}{\overline{x_i^p}}$$

La distribution de la variabilité annuelle est représentée sur la figure 1.5.

Au cours de l'année, la colonne totale d'O₃ subit une forte variation aux hautes latitudes, et une très faible variation au niveau des tropiques. Cette variabilité est majoritairement due aux changements de circulation stratosphérique pendant l'année.

L'O₃ troposphérique a une durée de vie beaucoup plus courte, et donc une variabilité plus importante. Sa distribution est principalement régie par les processus photochimiques de production et de destruction, avec un transport dans le vent des zones polluées. Sa variabilité est donc beaucoup plus importante au-dessus des continents, principalement dans l'hémisphère nord, ainsi qu'au-dessus de l'Atlantique et du Pacifique Nord. La forte variabilité aux hautes latitudes est due à la forte variabilité saisonnière dans cette région (accumulation de polluants en hiver et forte production photochimique au printemps).

La variabilité spatiale correspond au rapport de la différence entre le maximum global de x et son minimum global sur sa valeur au point de grille considéré :

$$\frac{x_{\max} - x_{\min}}{x_i}$$

Les résultats obtenus sont résumés dans le tableau 1.2.

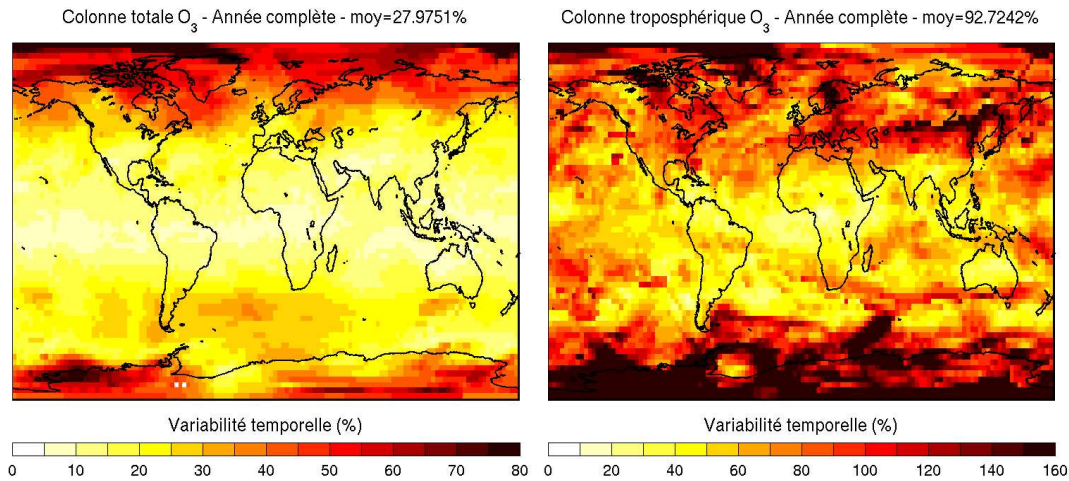


FIG. 1.5 – Variabilité temporelle des colonnes totales (à gauche) et troposphériques (à droite) d' O_3 MOZART/climatologies.

TAB. 1.2 – Variabilités temporelle et spatiale des colonnes totales et troposphériques d' O_3 MOZART/climatologies (variabilité moyenne \pm déviation standard).

Variabilité	(%)	Colonne totale	Colonne troposphérique
Temporelle :	DJF	10 ± 12	39 ± 38
	MAM	10 ± 8	43 ± 31
	JJA	9 ± 7	31 ± 27
	SON	10 ± 8	37 ± 25
	année complète	28 ± 21	93 ± 66
Spatiale :	janvier	87 ± 12	308 ± 115
	février	285 ± 49	1812 ± 773
	mars	100 ± 19	778 ± 402
	avril	125 ± 23	315 ± 139
	mai	68 ± 9	242 ± 85
	juin	45 ± 4	299 ± 93
	juillet	53 ± 4	310 ± 124
	août	38 ± 3	430 ± 196
	septembre	62 ± 6	444 ± 148
	octobre	72 ± 8	246 ± 81
	novembre	59 ± 6	240 ± 82
	décembre	65 ± 8	398 ± 167
	année complète	306 ± 40	1508 ± 642

Les variabilités spatiale et temporelle sont beaucoup plus importantes au printemps pour la colonne totale et la colonne troposphérique d'O₃, ce qui s'explique par une activité photochimique et dynamique très importante, particulièrement aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord.

En été, la photochimie est très importante dans les régions de fortes émissions de précurseurs et d'intense ensoleillement. La durée de vie de l'O₃ troposphérique est donc plus faible et le transport moins important. Sa variabilité spatiale est donc relativement élevée.

La variabilité globale de l'O₃ troposphérique est beaucoup plus élevée que celle de la colonne totale. Les inversions devront donc être réalisées avec une plus grande précision pour cette dernière. Afin d'obtenir une information globale sur la variabilité temporelle, les colonnes totales devront être estimées avec une précision meilleure que 10 %, et les colonnes troposphériques avec une précision meilleure que 30 %.

D'après les cartes de la figure 1.5, la variabilité dans les tropiques ne pourra cependant être observée que si une précision meilleure que 5 à 10 % sur les colonnes totales et 10 à 20 % sur les colonnes troposphériques est atteinte dans ces régions.

1.4 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons rappelé les principaux processus régissant l'équilibre de l'ozone dans la troposphère. Il est produit par des chaînes de réactions photochimiques complexes. Ses principaux précurseurs, le monoxyde de carbone et le méthane en présence d'oxydes d'azote, sont des polluants primaires émis naturellement par la végétation, les sols, les océans ou, plus ponctuellement, par les éclairs et les volcans. Leurs émissions sont fortement augmentées par les activités humaines, entraînant une forte pollution d'origine urbaine, industrielle ou agricole, ou associée aux feux de biomasse (majoritairement d'origine humaine). Le transport depuis la stratosphère constitue également une source importante pour l'ozone troposphérique.

La durée de vie de l'ozone troposphérique va de quelques jours à plusieurs mois et permet donc son transport. Les précurseurs de l'ozone seront également transportés, permettant une production d'ozone au-dessus de régions relativement éloignées des régions sources de précurseurs. Les principaux processus de transport sont liés à la convection, aux instabilités baroclines et à la circulation générale de la troposphère.

Après une présentation rapide du modèle de chimie-transport MOZART et des climatologies de l'ozone UGAMP, les distributions de colonnes totales et troposphériques d'O₃ issues de ce modèle ont été présentées. Une précision meilleure que 5 à 10 % sur l'estimation des colonnes totales et 10 à 30 % sur celle des colonnes troposphériques est nécessaire afin de bien représenter leur variabilité spatio-temporelle.

Malgré une bonne connaissance des différents processus en jeu, le dernier rapport de l'IPCC [IPCC, 2001] énumère un certain nombre de "questions ouvertes" à explorer ou à améliorer afin de bien représenter la troposphère globale : la représentation de certaines réactions chimiques, des petites échelles et des émissions, l'impact des nuages et des aérosols sur la photochimie ou le couplage stratosphère-troposphère. La mauvaise représentation de ces paramètres implique de fortes incertitudes sur le bilan de l'ozone troposphérique. Des bilans très variables sont en effet calculés par les modèles de chimie-transport actuels, chacun en bon accord avec les observations [IPCC, 2001]. Ces différences sont principale-

ment attribuées à la mauvaise représentation des échanges stratosphère-troposphère.

Afin d'améliorer l'évaluation du bilan de l'ozone troposphérique, des observations fiables et bien distribuées sont donc nécessaires. Les mesures d'ozone *in situ* ou embarquées (avion, ballon) fournissent des mesures de très bonne qualité mais dont la couverture spatio-temporelle reste limitée [Logan, 1999; Emmons et al., 2000]. Bien qu'elles soient moins précises, les mesures spatiales permettent d'obtenir des observations globales sur de longues périodes de temps.

Chapitre 2

Observations spatiales dans l'infrarouge

La plupart des méthodes de télédétection¹ de paramètres atmosphériques reposent sur l'interaction de l'atmosphère avec un rayonnement électromagnétique (même si la propagation du son a également été utilisée). Les caractéristiques de l'onde mesurée après son passage dans l'atmosphère dépendent en effet de la composition de l'atmosphère et de ses propriétés, ainsi que des propriétés de la surface de la Terre. Une information sur le système Terre-atmosphère peut donc être extraite du rayonnement détecté par un instrument depuis l'espace.

L'onde électromagnétique peut être générée artificiellement (on parle alors de télédétection active, utilisée par le LIDAR ou le RADAR par exemple) ou par une source naturelle de rayonnement (méthode passive). L'observation passive du système Terre-atmosphère depuis l'espace utilise généralement le rayonnement émis par le soleil dans le domaine de l'UV-visible-proche infrarouge (IR), rétro-diffusé par l'atmosphère vers le détecteur, ou le rayonnement thermique émis par la surface de la Terre, principalement dans l'IR, transmis à travers l'atmosphère.

Le travail présenté dans ce manuscrit repose sur l'analyse du rayonnement IR, qui sera mesuré par l'instrument IASI (Infrared Atmospheric Sounding Instrument) et a été mesuré par son précurseur IMG (Interferometric Monitor for Greenhouse Gases). Chaque couche de l'atmosphère émet un rayonnement dans ce domaine spectral où, en outre, de nombreuses molécules présentent d'importantes signatures spectrales (en absorption et émission). Le rayonnement IR mesuré dans l'espace après sa traversée de l'atmosphère contiendra donc une information importante sur la surface de la Terre ainsi que sur les caractéristiques thermiques et chimiques de l'atmosphère [Girard et Camy-Peyret, 1994; Camy-Peyret et al., 2001].

Afin d'accéder aux paramètres recherchés, la quantité d'ozone dans l'atmosphère dans notre cas, il est nécessaire d'interpréter correctement le rayonnement mesuré dans des intervalles spectraux sensibles aux propriétés physico-chimiques qui nous intéressent. Pour cela, une méthode d'inversion des spectres doit être développée.

Nous allons dans ce chapitre décrire les principales propriétés du rayonnement mesuré depuis l'espace en utilisant les principes du transfert radiatif, avant d'introduire les notions de problème direct et de problème inverse. Tout en restant général, ce chapitre très théorique sera orienté vers la description d'une mesure de type IASI, c'est-à-dire une mesure depuis l'espace en visée au nadir dans l'IR thermique. Notre exposé de la théorie du transfert radiatif est basé sur les descriptions de Camy-Peyret [1990] et Lenoble [1993].

¹La télédétection désigne toute mesure réalisée à une certaine distance de l'objet observé.

Notre résumé des concepts du problème inverse est basé sur la théorie de *Rodgers* [1976, 1990, 2000].

2.1 Le transfert radiatif dans l'infrarouge thermique

2.1.1 Émission de rayonnement

Tout corps émet un rayonnement qui dépend de sa température. L'équation de Planck donne l'expression du rayonnement émis par un corps noir à la température T en fonction du nombre d'onde ν :

$$B_\nu(T) = \frac{2h\nu^3 c^2}{\exp(\frac{h\nu c}{kT}) - 1} \quad (2.1)$$

avec h la constante de Planck, c la vitesse de la lumière dans le vide et k la constante de Boltzmann.

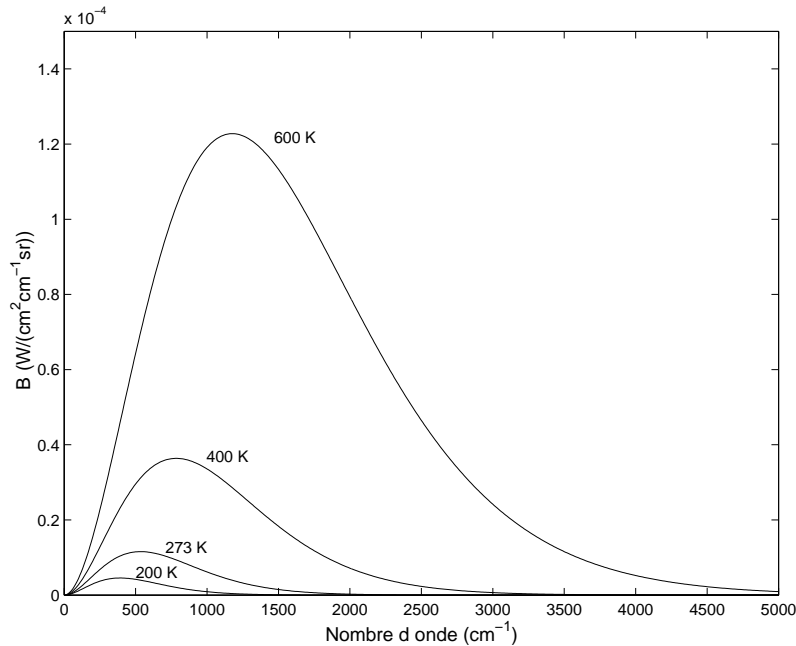


FIG. 2.1 – Spectre d'émission d'un corps noir à 200, 273, 400 et 600 K.

La surface de la Terre (continent ou océan) émet un rayonnement qui peut être exprimé comme l'émission d'un corps noir pondérée par l'émissivité de la surface $\epsilon_{s,\nu}$:

$$L_\nu(0) = \epsilon_{s,\nu} B_\nu(T_0) , \quad 0 \leq \epsilon_{s,\nu} \leq 1 \quad (2.2)$$

L'émissivité de la surface étant généralement différente de l'unité, on ne parle plus de corps noir mais de corps gris.

Localement, l'atmosphère est considérée en équilibre thermodynamique à une température T , et émet un rayonnement $B_\nu(T)$ de manière isotrope (dans toutes les directions). La quantité d'énergie absorbée dans une direction x par une couche de gaz d'épaisseur

dx est égale à $B_\nu(T) k_\nu dx$, où k_ν est le coefficient spectral volumique d'absorption du gaz considéré (exprimé en cm^{-1}). La même quantité de gaz va également émettre une quantité d'énergie égale à $B_\nu(T) \epsilon_\nu dx$ dans la direction x , où ϵ_ν est le coefficient spectral d'émission du gaz considéré. Afin de maintenir l'équilibre thermodynamique du milieu, la quantité d'énergie émise doit être égale à la quantité d'énergie absorbée dans la même direction. Ceci implique que les coefficients d'absorption et d'émission soient égaux à l'équilibre thermodynamique $k_\nu = \epsilon_\nu$ (loi de Kirchhoff).

2.1.2 Transmission et atténuation du rayonnement

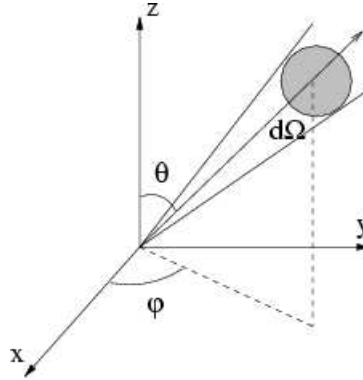


FIG. 2.2 – Rayon traversant un élément de surface dA sous un angle θ confiné à un angle solide élémentaire $d\Omega$.

En se référant à la représentation sphérique de l'atmosphère de la figure 2.2, une luminance est définie comme la quantité d'énergie traversant, pendant un intervalle de temps dt et dans un intervalle de nombre d'onde allant de ν à $\nu + d\nu$, une surface différentielle dA sous un angle θ , le rayon étant confiné dans un angle solide $d\Omega$. Ainsi, la luminance peut s'exprimer de la manière suivante :

$$L_\nu = \frac{dE_\nu}{\cos\theta dA dt d\Omega d\nu} \quad (2.3)$$

Son unité est le $\text{W}/(\text{cm}^2\text{cm}^{-1}\text{sr})$.

Lorsque le rayonnement monochromatique de luminance L_ν pénètre dans un milieu absorbant (Figure 2.3), la luminance est atténuée le long du chemin dx d'un facteur :

$$\frac{dL_\nu}{L_\nu} = -k_\nu dx \quad (2.4)$$

En intégrant cette équation sur tout le milieu traversé on obtient :

$$L_\nu(x) = L_\nu(0) \exp\left(-\int_0^x k_\nu dx\right) \quad (2.5)$$

où $L_\nu(0)$ est la luminance à la limite du milieu, c'est-à-dire la luminance pénétrant dans le milieu à $x = 0$. Le rapport $L_\nu(x)/L_\nu(0)$ représente la transmittance $T_\nu(0, x)$ du milieu et $\int_0^x k_\nu dx$ son épaisseur optique $\tau_\nu(0, x)$. Ce sont des grandeurs sans dimension.

2.1.3 Équation du transfert radiatif

Considérons l'élément de volume de la figure 2.3. L'équation du transfert d'énergie pour un rayonnement monochromatique peut s'écrire de la manière suivante :

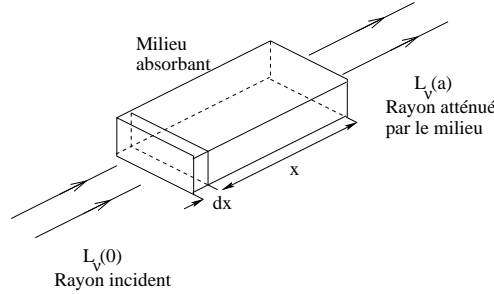


FIG. 2.3 – Éléments de volume ($0 \leq x \leq a$) contenant un milieu dont les propriétés permettent l'absorption et l'émission d'un rayonnement.

$$dL_\nu = -L_\nu k_\nu dx + J_\nu dx \quad (2.6)$$

où le rayonnement incident se propage dans la direction x , avec x compris entre 0 et a . Le premier terme représente l'absorption dans l'élément dx . J_ν représente la fonction source dans dx et comprend un terme dû à la diffusion vers l'élément de volume considéré, J_ν^{diff} , et un terme d'émission thermique, $J_\nu^{\text{ém}}$:

$$J_\nu = J_\nu^{\text{diff}} + J_\nu^{\text{ém}}$$

L'équation générale est développée dans *Lenoble* [1993]. Nous allons ici nous placer dans le cas d'une observation spatiale dans l'infrarouge thermique et en visée au nadir (cas de l'observation IASI et IMG), schématisée sur la figure 2.4. Dans la majeure partie du

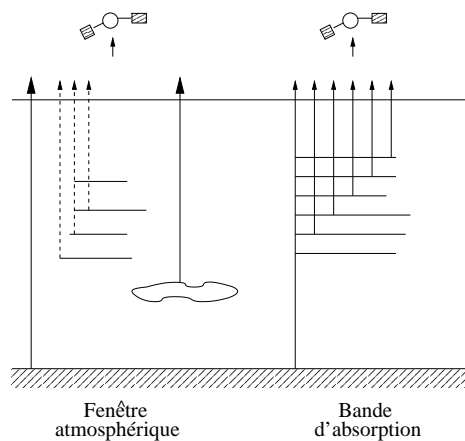


FIG. 2.4 – Télédétection en visée au nadir de rayonnement IR dans une fenêtre atmosphérique (à gauche) et dans le domaine spectral où absorbent les constituants atmosphériques (à droite) [Lenoble, 1993]. Les lignes en trait plein correspondent aux contributions principales, et les lignes en pointillés à des termes secondaires.

domaine spectral de l'infrarouge thermique, la contribution du rayonnement solaire peut être négligée (attention, elle devient cependant importante à partir d'environ 2700 cm^{-1}) ; la source de rayonnement est donc la surface de la Terre. La diffusion moléculaire ou par les aérosols peut également être négligée, les processus prépondérants étant l'émission de la surface de la Terre et l'absorption et l'émission par les constituants gazeux de l'atmosphère, les aérosols et les nuages. En considérant toujours l'élément de volume de la figure 2.3, et en appliquant la loi de Kirchhoff, la fonction source peut s'écrire :

$$J_\nu \simeq J_\nu^{\text{em}} = \epsilon_\nu B_\nu(T_x) = k_\nu B_\nu(T_x)$$

Dans le cas d'une observation spatiale, l'observation se fait en dehors du milieu, après sa traversée. Nous nous intéressons à la valeur de la luminance à $x = a$. L'équation 2.6 devient donc :

$$\frac{1}{k_\nu} \frac{dL_\nu}{dx} = -L_\nu(x) + B_\nu(T_x) \quad (2.7)$$

où T_x est la température du gaz en x .

L'épaisseur optique du milieu entre les points x et a est définie par

$$\tau_\nu(x, a) = \int_x^a k_\nu dx' \quad (2.8)$$

$$d\tau_\nu(x, a) = \frac{d\tau_\nu(x, a)}{dx} dx = -k_\nu dx$$

D'où

$$\frac{dL_\nu(x)}{d\tau_\nu(x, a)} = L_\nu(x) - B_\nu(T_x) \quad (2.9)$$

En notant que

$$d[L_\nu \exp(-\tau_\nu(x, a))] = dL_\nu \exp(-\tau_\nu(x, a)) - L_\nu d\tau_\nu \exp(-\tau_\nu(x, a))$$

alors

$$-\int_0^a d[L_\nu \exp(-\tau_\nu(x, a))] = \int_0^a B_\nu(T_x) \exp(-\tau_\nu(x, a)) d\tau_\nu(x, a)$$

et on obtient finalement

$$L_\nu(a) = L_\nu(0) \exp\left(-\int_0^a k_\nu dx\right) + \int_0^a k_\nu B_\nu(T_x) \exp\left(-\int_x^a k_\nu dx\right) dx \quad (2.10)$$

Le premier terme de cette équation représente la luminance en $x = 0$ (limite inférieure) multipliée par la transmittance du milieu depuis $x = 0$ jusqu'à $x = a$. Le second terme représente la contribution due à l'émission du milieu dans la direction de l'onde incidente. Ainsi chaque portion dx autour d'un point x émet un rayonnement dépendant de son émissivité ($\epsilon_\nu = k_\nu$), elle-même dépendante de la quantité de gaz présente, et de sa température (T_x). L'énergie est ensuite atténuée sur sa trajectoire entre x et a d'un facteur donné par la transmittance :

$$T_\nu(x, a) = \exp\left(-\int_x^a k_\nu dx\right)$$

Afin d'obtenir une équation représentant de manière plus réaliste la luminance émise par l'atmosphère vers l'espace, une représentation en coordonnées sphériques est plus

adaptée (figure 2.2). Pour une observation en visée au nadir, l'approximation d'une atmosphère plan parallèle permet de simplifier la représentation : le milieu est limité verticalement par deux couches parallèles. En appelant z l'axe zénithal, θ l'angle zénithal du rayonnement émis et z_x le sommet de l'atmosphère, la solution devient :

$$L_\nu(z_x, \theta) = L_\nu(0, \theta) T_\nu(0, z_x, \theta) + \int_0^{z_x} \frac{k_\nu}{\cos\theta} B_\nu(T_z) T_\nu(z, z_x, \theta) dz$$

avec

$$T_\nu(z, z_x, \theta) = \exp\left(-\int_z^{z_x} \frac{k_\nu}{\cos\theta} dz\right)$$

où le terme $dz/\cos\theta$ représente l'augmentation d'épaisseur optique avec l'angle zénithal pour une atmosphère plan parallèle. La contribution de la surface radiative inférieure (continent ou océan) peut être exprimée comme $L_\nu(0) = \epsilon_{s,\nu} B_\nu(T_0)$ où $\epsilon_{s,\nu}$ est l'émissivité de cette surface.

Ainsi l'équation générale du transfert radiatif pour une observation spatiale dans l'IR thermique en visée au nadir peut s'écrire :

$$L_\nu(z_x, \theta) = \epsilon_{s,\nu} B_\nu(T_0) T_\nu(0, z_x, \theta) + \int_0^{z_x} \frac{k_\nu}{\cos\theta} B_\nu(T_z) T_\nu(z, z_x, \theta) dz \quad (2.11)$$

2.1.4 Interaction rayonnement - atmosphère

Dans les paragraphes précédents, nous avons établi l'équation générale du transfert radiatif permettant d'exprimer le rayonnement du système Terre-atmosphère mesuré depuis l'espace. La source principale de ce rayonnement est la surface de la Terre et il porte les signatures des interactions avec l'atmosphère telles que l'absorption par les espèces chimiques. Dans cette sous-partie, nous décrivons l'absorption et l'émission par une molécule de constituant atmosphérique en adoptant le point de vue quantique. Cette description spectroscopique nous fournira une vision claire de l'information contenue dans les spectres atmosphériques mesurés et concernant la composition de l'atmosphère.

Une molécule est caractérisée par des niveaux d'énergie propres, quantifiés, qui correspondent à un état électronique et à un état de rotation et de vibration de la molécule. Elle peut absorber des photons dont l'énergie correspond à une transition entre deux niveaux d'énergie donnés (les transitions permises sont données par des règles de sélection précises). Cette énergie est donnée par l'expression : $\Delta E = h c \Delta\nu$ où c est la vitesse de la lumière dans le vide, h est la constante de Planck et $\Delta\nu$ est le nombre d'onde du rayonnement absorbé. Elle se trouve alors dans un état excité mais revient rapidement dans son état fondamental en ré-émettant l'énergie acquise (cette réémission ne se fait pas nécessairement à la même longueur d'onde).

Les niveaux d'énergie sont organisés de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \Delta E_{\text{rotation}} &\leq \Delta E_{\text{vibration}} \leq \Delta E_{\text{électronique}} \\ \text{ou } \Delta\nu_{\text{rotation}} &\leq \Delta\nu_{\text{vibration}} \leq \Delta\nu_{\text{électronique}} \end{aligned}$$

La différence entre les niveaux électroniques est plus importante que la différence entre les niveaux vibrationnels, elle-même plus importante que celle entre les niveaux rotationnels (figure 2.5).

Ainsi, chaque type de transition appartient à un domaine de longueur d'onde différent :

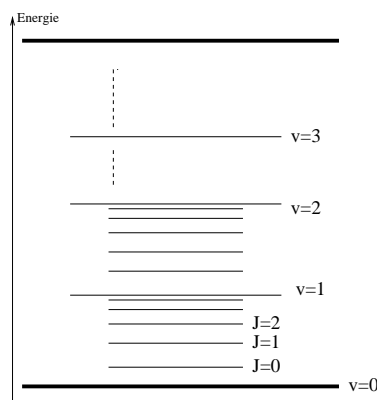


FIG. 2.5 – Niveaux d'énergie correspondant aux niveaux électroniques (traits gras), vibrationnels (v) et rotationnels (J).

- les transitions entre les niveaux électroniques sont accompagnées de l'émission/absorption de photons dans l'ultra-violet et le visible ;
- le domaine des transitions vibrationnelles s'étend du visible à l'infrarouge ;
- le domaine des transitions rotationnelles s'étend de l'infrarouge lointain aux micro-ondes.

Nous nous intéressons ici à des observations dans l'infrarouge. Les spectres mesurés seront donc des spectres de rotation-vibration.

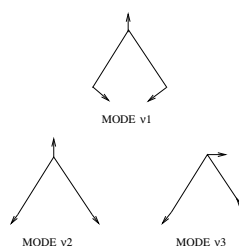


FIG. 2.6 – Modes de vibration pour une molécule tri-atomique non-linéaire

Le nombre de modes de vibration est $(3N - 6)$ pour une molécule comprenant N atomes, $(3N - 5)$ si la molécule considérée est linéaire. L'ozone est une molécule tri-atomique non-linéaire, et a donc 3 modes de vibration : ν_1 , ν_2 et ν_3 , représentés sur la figure 2.6. Les trois modes sont actifs dans l'infrarouge avec la bande ν_1 entre 943 et 1271 cm^{-1} , ν_2 entre 558 et 897 cm^{-1} , ν_3 entre 921 et 1244 cm^{-1} , $\nu_1 + \nu_2$ entre 1666 et 1963 cm^{-1} , $\nu_2 + \nu_3$ entre 1634 et 1927 cm^{-1} et $\nu_1 + \nu_3$ entre 1913 et 2322 cm^{-1} [Rothman et al., 1992]. L'intensité des raies est cependant plus forte dans la bande ν_3 . La bande $\nu_1 + \nu_3$ est également relativement intense.

Une partie du spectre théorique de l'ozone extrait de la base de données spectroscopiques HITRAN 1996 [Rothman et al., 1998] et correspondant à la bande ν_3 est représentée sur la figure 2.7. Ce spectre est un spectre de rotation-vibration caractéristique centré autour de 1040 cm^{-1} . Sa complexité (on observe des centaines de raies) vient en partie du fait que les modes ν_1 et ν_3 sont très proches et se recouvrent.

Les règles de transition pour les spectres de rotation-vibration autorisent toutes les

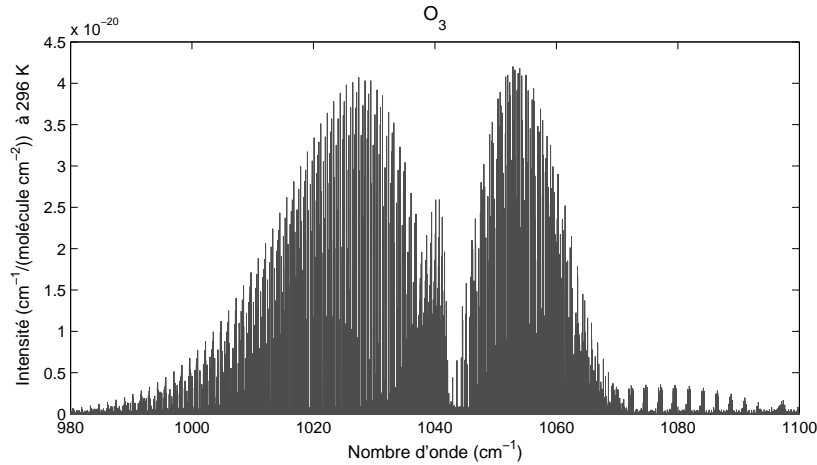


FIG. 2.7 – Portion du spectre théorique HITRAN (représenté en section efficace) dans le domaine spectral $[980 - 1100 \text{ cm}^{-1}]$ (bandes ν_1 et ν_3 de l'ozone).

transitions vibrationnelles mais seulement les transitions rotationnelles satisfaisant $\Delta J = 0, \pm 1$ (J étant le nombre quantique caractérisant les niveaux rotationnels). Sur les spectres d'absorption, les raies sont regroupées en bandes. Pour les bandes de l'ozone dans l'infrarouge, la structure correspondant aux spectres de rotation-vibration est clairement identifiable, avec une branche P pour les transitions avec $\Delta J = -1$, une branche Q pour les transitions avec $\Delta J = 0$, et une branche R pour les transitions avec $\Delta J = +1$ (figure 2.8).

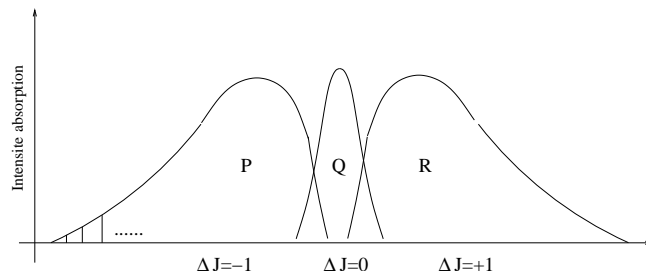


FIG. 2.8 – Spectre de rotation-vibration.

Les principales contributions à la luminance mesurée dans l'espace sont l'émission par la surface de la Terre, l'absorption et l'émission par les constituants gazeux de l'atmosphère, les aérosols et les nuages.

Les raies observées sur les spectres atmosphériques ne sont pas assimilables à des pics de Dirac : l'absorption ou l'émission d'un rayonnement purement monochromatique n'est pas possible. Les raies subissent en effet plusieurs élargissements : l'élargissement naturel, l'élargissement collisionnel et l'élargissement Doppler.

1. L'élargissement naturel : cet élargissement est engendré par l'étalement des niveaux d'énergie impliqués dans les transitions. Si ΔE est l'énergie et Δt la durée de vie d'un

niveau donné, l'inégalité d'Heisenberg (ou principe d'incertitude) donne $\Delta E \Delta t = \hbar$ ou $h \Delta \nu \Delta t = h/2\pi$ avec $\Delta \nu$ la largeur de la raie, h la constante de Planck et $\hbar = h/2\pi$. Une incertitude sera donc associée à l'absorption (ou à l'émission) au nombre d'onde ν lors de la transition entre deux niveaux d'énergie. Cette incertitude implique un élargissement des raies, qui est inversement proportionnel à la durée de vie des états excités, et conduit à des formes de raies de type Lorentzien. Son effet sur une raie est plutôt visible au niveau des ailes de la raie qu'au niveau de son sommet (pour des raies suffisamment intenses) comme le montre la figure 2.9.

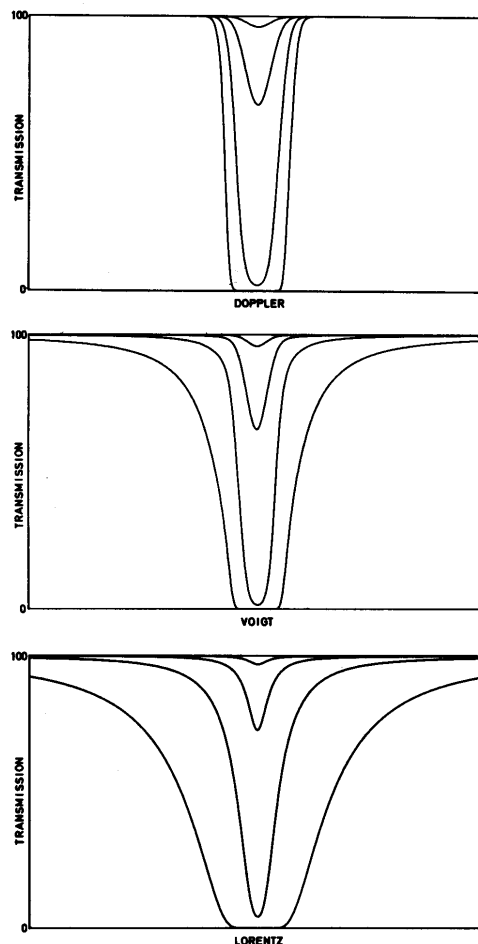


FIG. 2.9 – Transmission des profils Doppler, Voigt et Lorentz calculées pour une demi-largeur à mi-hauteur identique et pour des chemins optiques multipliés chaque fois par un facteur 10. D'après Müller [1984].

2. L'élargissement collisionnel : cet élargissement est dû aux nombreuses interactions qui accompagnent les collisions entre les molécules. Deux types d'interactions peuvent être distinguées : les collisions faibles pour lesquelles l'énergie gagnée ou perdue ne permet pas à la molécule d'effectuer des transitions entre les niveaux d'énergie, et les collisions suffisamment fortes pour permettre la transition entre deux niveaux d'énergie. Ces dernières engendrent la modification de la durée de vie des niveaux d'énergie. Ce phénomène est plus fréquent pour des niveaux proches, et va donc être dominant dans les régions de l'infrarouge et des micro-ondes. Le nombre de colli-

sions est, d'autre part, d'autant plus grand que le nombre de molécules impliquées est élevé et que leur vitesse est importante. Ces facteurs dépendent des conditions de pression (P) et de température (T), impliquant un élargissement proportionnel à P/T^x ($0 < x < 1$). Ainsi, l'élargissement collisionnel est plus important dans les basses couches de l'atmosphère, où la pression est plus élevée. C'est, d'autre part, un élargissement Lorentzien (figure 2.9).

3. L'élargissement Doppler : cet élargissement est dû au déplacement thermique des molécules, la largeur de raie sera donc proportionnelle à la température. La figure 2.9 montre que cet élargissement est surtout perceptible au sommet de la raie, tant que la raie ne sature pas.

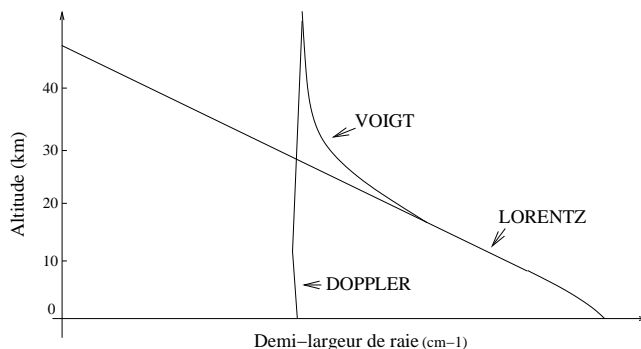


FIG. 2.10 – Schéma qualitatif de l'importance relative des différents profils de raies suivant l'altitude. D'après Müller [1984].

La figure 2.9 montre les différents profils de raie rencontrés. L'importance relative des différents profils en fonction de l'altitude est donnée par la figure 2.10. Lorsque l'importance des élargissements Doppler et collisionnel est comparable, le profil de raie est une combinaison des profils Doppler et Lorentzien : le profil de Voigt. Comme nous l'avons souligné précédemment, à basse altitude, l'élargissement collisionnel est dominant. À plus haute altitude, la pression est suffisamment faible pour que l'élargissement Doppler devienne prépondérant. Ainsi, les raies spectrales contiennent une information sur la distribution verticale du constituant absorbant.

Aux interactions moléculaires discrètes décrites ici doit être ajouté un autre type de transitions, dont la nature est moins bien comprise, contribuant au “continuum” d'absorption ou d'émission. Ce phénomène est important pour plusieurs molécules atmosphériques (H_2O et CO_2 par exemple), en particulier dans l'IR thermique.

2.1.5 Modélisation du transfert radiatif

Les spectres qui ont été simulés pour ces travaux ont été calculés à l'aide du code de transfert radiatif raie-à-raie à haute résolution spectrale LBLRTM (Line-By-Line Radiative Transfer Model) [Clough *et al.*, 1995a; Clough *et al.*, 1995b]. Ce modèle est très utilisé par la communauté scientifique et a fait l'objet de nombreuses publications. Les éléments les plus importants de LBLRTM sont les suivants :

- Le profil de raie de Voigt est utilisé à tous les niveaux atmosphériques avec un algorithme basé sur une combinaison linéaire de fonctions d'approximation ;

- Tous les paramètres de la base spectroscopique HITRAN sont utilisés, y compris le coefficient d'élargissement des raies par la pression, la dépendance en température de la demi-largeur des raies, et le coefficient d'auto-élargissement de la vapeur d'eau ;
- Un programme est utilisé pour définir la dépendance en température de l'intensité des raies (programme TIPS [*Gamache et al.*, 1990]) ;
- L'effet du couplage de raies est traité au second ordre avec les coefficients pour le CO₂ dans la région 600-800 cm⁻¹ inclus explicitement ;
- Les données de sections efficaces (dépendantes de la température), telles que celles disponibles dans la base HITRAN, peuvent être utilisées pour le traînement de l'absorption due aux molécules lourdes comme les halo-carbones ;
- Un algorithme est implémenté pour le traitement de la variation de la fonction de Planck à l'intérieur d'une couche verticalement hétérogène.

Les continua de la vapeur d'eau et du CO₂ (important à 2400 cm⁻¹), ainsi que ceux des bandes d'oxygène et d'azote, induits par les collisions (respectivement à 1600 et 2350 cm⁻¹), sont pris en compte dans le modèle.

La précision algorithmique de LBLRTM est estimée à 0.5 %. Les erreurs associées aux procédures de calcul sont environ 5 fois plus faibles que les erreurs sur les paramètres spectroscopiques. L'erreur limitante est donc plutôt associée aux paramètres de raies et à leurs profils.

Nous avons ici utilisé la base de données spectroscopiques HITRAN 1996 [*Rothman et al.*, 1998]. Les spectres sont calculés avec des résolutions spectrales et des pas d'échantillonnage fixes, sur une région spectrale donnée et pour un état de l'atmosphère spécifié. Le code calcule dans un premier temps un spectre à haute résolution, qui est ensuite convolué par la fonction d'instrument appropriée. Les fonctions disponibles dans le code sont les fonctions rectangulaire, triangulaire, gaussienne, sinus cardinal, sinus cardinal carré, de Beer, de Hamming, de Hanning ainsi que les fonctions de Norton-Beer faible, modérée et forte.

L'état de l'atmosphère en entrée du code est défini par les profils de température, de pression et de rapport de mélange des constituants sur des niveaux verticaux spécifiés. Ces profils peuvent être entrés par l'utilisateur ou pris dans l'une des 6 atmosphères de référence disponibles dans le code et provenant de différents modèles (tropical, moyennes latitudes en été, moyennes latitudes en hiver, subarctique en été, subarctique en hiver, standard — modèle US STANDARD 1976 de l'AFGL) [*Anderson et al.*, 1986]. Jusqu'à 33 molécules peuvent être traitées : H₂O, CO₂, O₃, N₂O, CO, CH₄, O₂, NO, SO₂, NO₂, NH₃, HNO₃, OH, HF, HCl, HBr, HI, ClO, OCS, H₂CO, HOCl, N₂, HCN, CH₃Cl, H₂O₂, C₂H₂, C₂H₆, PH₃, COF₂, SF₆, H₂S et HCOOH. D'autre part, les sections efficaces de ClONO₂, HNO₄ et des CFCs peuvent être prises en compte. Nous n'avons ici pris en compte que les 7 premières molécules citées, principales espèces absorbant dans l'infrarouge.

2.1.6 Spectres atmosphériques

Un exemple de spectre haute résolution simulé dans le domaine spectral 600 – 3000 cm⁻¹ pour des conditions modérément polluées avec une résolution de 0.2 cm⁻¹ est représenté sur la figure 2.11.

En comparant ce spectre (en transmittance) au spectre théorique de l'ozone pour la région 990–1080 cm⁻¹ de la figure 2.7 (en section efficace), nous pouvons remarquer l'influence couplée de l'élargissement des raies spectrales et de la résolution instrumentale :

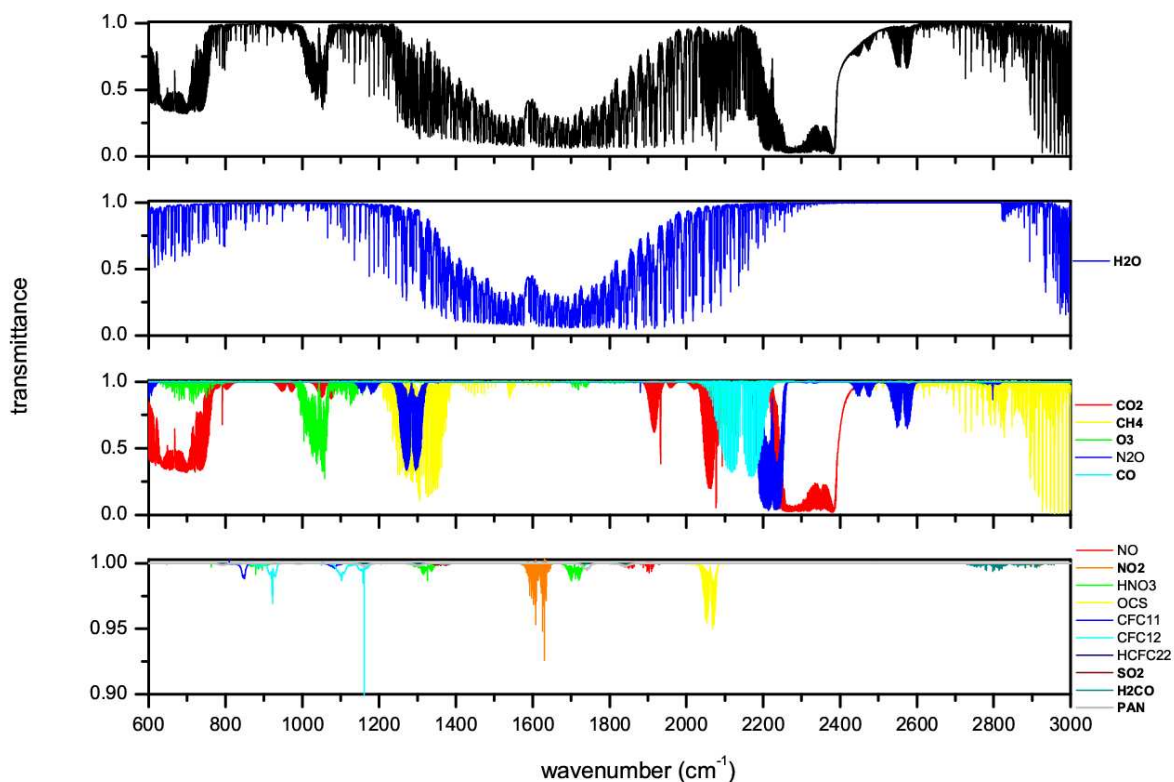


FIG. 2.11 – Spectre atmosphérique (en transmittance) dans le domaine spectral $600 - 3000 \text{ cm}^{-1}$ simulé pour des conditions de type Amérique du Nord (en haut), et simulations des contributions en absorption de H_2O et des molécules absorbant fortement (milieu) et faiblement (en bas) [Clerbaux et al., 2003b].

les raies sont plus difficilement identifiables et un fort recouvrement limite l'accès aux ailes de raies contenant l'information sur les basses couches de l'atmosphère. Nous pouvons donc nous attendre à une moins bonne sensibilité des spectres à la basse atmosphère. Les spectres mesurés sont également affectés par un bruit radiométrique impliquant de petites variations qui ne sont pas associées à des variables géophysiques.

Le spectre comprend la signature d'un grand nombre de variables géophysiques, en particulier d'un grand nombre de molécules atmosphériques. Des simulations de transfert radiatif ont été réalisées afin de visualiser les principaux absorbants atmosphériques dans cette région spectrale. La bande d'absorption ν_2 et le continuum d'absorption de l'eau constituent les signatures les plus importantes, recouvrant la majorité du domaine spectral. Les bandes de vibration du CO_2 , du CH_4 , de l' O_3 , du N_2O et du CO sont également clairement identifiables. Différents travaux ont montré la possibilité d'inverser leurs contenus intégrés ou plusieurs informations sur leur distribution verticale à partir des mesures IR [Clerbaux et al., 1999; Hadji-Lazaro et al., 1999; Chedin et al., 2002; Chedin et al., 2003; Turquety et al., 2002b; Turquety et al., 2003; Clerbaux et al., 2003a].

Pour l' O_3 , les différentes bandes de vibration précédemment discutées sont bien vi-

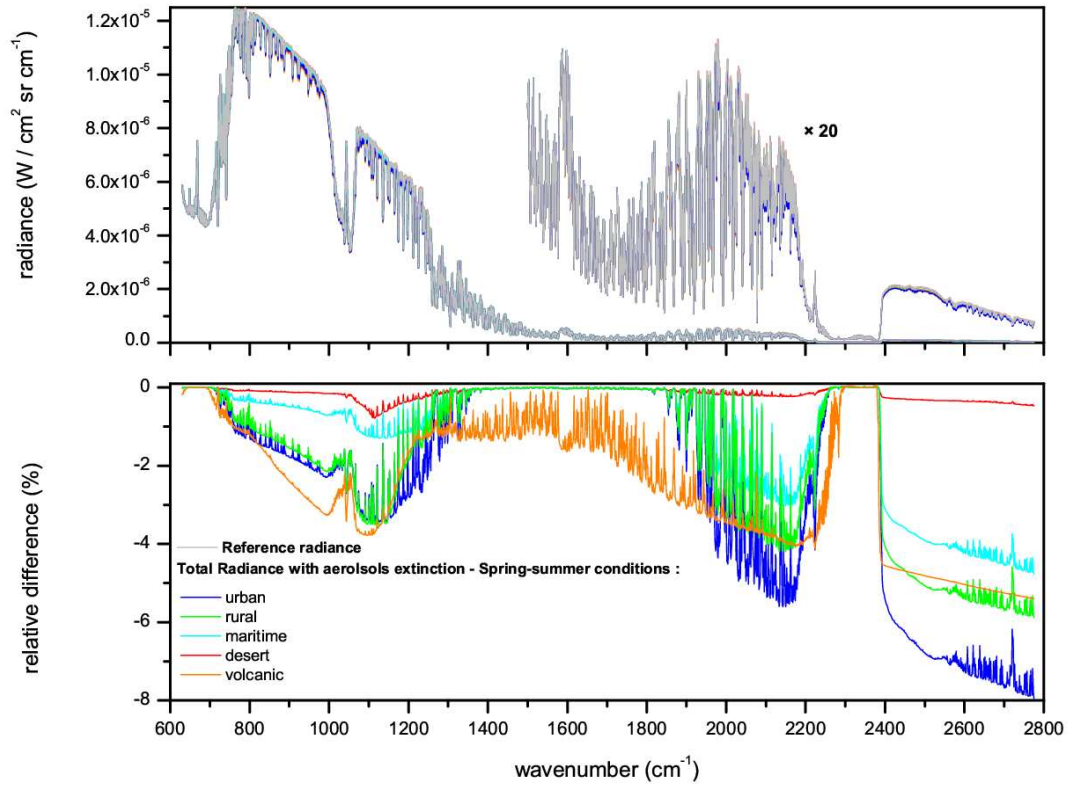


FIG. 2.12 – Simulations des spectres de luminance dans le domaine spectral $600 - 3000 \text{ cm}^{-1}$ pour cinq types d'aérosols (rural, urbain, désertique, maritime et volcanique) et une atmosphère sans aérosol (en haut) et différences relatives avec le spectre simulé sans aérosol (en bas) (avec la permission de Michel Kruglanski, IASB-BIRA, Belgique).

sibles. Cependant, la bande ν_3 , centrée à $\sim 1042 \text{ cm}^{-1}$, est la mieux isolée et la plus intense (la bande $\nu_1 + \nu_3$, centrée à $\sim 2111 \text{ cm}^{-1}$, se confond avec les signatures du CO_2 et du CO). C'est la première région spectrale (bande de l'ozone à $9.7 \mu\text{m}$) qui sera conservée pour l'inversion des quantités d' O_3 .

De plus faibles signatures spectrales (transmittance $< 10\%$) sont associées à l'absorption de NO , NO_2 , HNO_3 , OCS , CFC11 , CFC12 , HCFC22 , SO_2 , H_2CO et PAN . La faible intensité de ces signatures est soit due à de faibles raies d'absorption, soit due à de faibles rapports de mélanges atmosphériques [Clerbaux et al., 2003a]. Hormis NO et NO_2 , dont les contributions se situent au centre de la forte bande d'absorption de H_2O , ces espèces peuvent être détectées directement (comme OCS [Payan et al., 1998]) ou en moyennant les spectres (comme les CFCs et HCFC22 [Coheur et al., 2002]). Le SO_2 pourrait également être détecté dans au voisinage de volcans en phase d'éruption majeure comme l'ont montré de récentes études sur les données de l'instrument AIRS (Atmospheric InfraRed Sounder, http://airs.jpl.nasa.gov/images_data/image_releases/2002/mt_etna_S02.html).

Dans cette thèse, nous n'avons pas pris en compte la contribution des aérosols : toutes les simulations de transfert radiatif ont été réalisées sans aérosol. Des études de sensibilité

réalisées dans le cadre de la mission IASI [*Kruglanski and De Mazière, 2002*] ont cependant montré les variations relatives des spectres de luminance dues aux différentes classes d'aérosols (urbains, marins, volcaniques, désertiques), représentées sur la figure 2.12. La contribution des aérosols est généralement faible, souvent de type continuum, mais peut atteindre 2 à 3 % dans la région qui nous intéresse pour l'O₃ (990–1080 cm⁻¹). *Grimanov et al.*, [2001] ont également mis en évidence un signal associé aux poussières désertiques autour de 1157 cm⁻¹ dans les spectres IMG mesurés au-dessus du Sahara. Des études plus précises sont nécessaires afin d'explorer la signature des aérosols dans l'IR thermique et l'utilité potentielle des mesures IR pour l'observation des aérosols.

D'une manière générale, l'étude d'une espèce donnée nécessite dans un premier temps la sélection des intervalles où les signatures spectrales correspondantes sont bien isolées, en minimisant les interférences avec les autres constituants absorbant dans la même région spectrale. Pour la bande ν_3 de l'O₃, en particulier, les contributions de H₂O et CO₂ devront être écartées autant que possible. La sélection des canaux correspondants et l'analyse de leur contenu en information sont présentées dans le chapitre 4 de cette thèse.

2.2 Problème direct et problème inverse

Comme nous l'avons vu, le signal mesuré par l'instrument (le spectre atmosphérique de luminance) est le résultat de l'interaction entre le rayonnement émis par la surface de la Terre et l'atmosphère. Il est composé de milliers de signatures d'émission et d'absorption organisées en bandes de raies. Pour une atmosphère non-nuageuse, la luminance atteignant le sommet de l'atmosphère au nombre d'onde ν peut s'écrire :

$$L_\nu(\theta) = \epsilon_{0,\nu} B_\nu(T_0) T_\nu(0, \theta) + \int_0^{z_x} B_\nu(T(z)) \frac{dT_\nu(z, \theta)}{dz} dz \quad (2.12)$$

$$\begin{aligned} T_\nu(z, \theta) &= \exp(-\tau_n u(z)) \\ &= \exp\left(-\int_z^0 \frac{k_\nu}{\cos\theta} dz\right) \end{aligned}$$

Cette luminance est une fonction des caractéristiques de la surface émettrice (émissivité $\epsilon_{0,\nu}$, température T_0), de la distribution verticale de la température $T(z)$, de la distribution verticale et des propriétés spectroscopiques des éléments atmosphériques contribuant au bilan radiatif au même nombre d'onde ν (gaz, aérosols) par l'intermédiaire de la transmittance T_ν .

Le spectre atmosphérique mesuré dans l'espace dépend également des caractéristiques instrumentales telles que la fonction caractérisant la réponse spectrale et le bruit radiométrique. L'équation 2.12 peut être simplifiée en considérant la contribution de la surface au rayonnement mesuré négligeable par rapport à la contribution de l'atmosphère [*Rodgers, 2000*] :

$$L_\nu(\theta) = \int_0^{z_x} B_\nu(T(z)) \frac{dT_\nu(z)}{dz} dz \quad (2.13)$$

Considérons un ensemble de m mesures de luminance L_{ν_i} , $i = 1, \dots, m$ à un ensemble de nombres d'ondes ν_i suffisamment proches pour considérer la fonction de Planck constante

(faible variation sur la région spectrale considérée), l'équation précédente devient, après intégration par parties :

$$L_i = L_{\nu_i} = B_{\bar{\nu}}(T(z_x)) - \int_0^{z_x} T_{\bar{\nu}}(z) \frac{dB_{\bar{\nu}}(T(z))}{dz} dz \quad (2.14)$$

avec $\bar{\nu}$ un nombre d'onde représentatif. Les contributions du profil de température et des profils de constituants atmosphériques sont découplées.

Pour les mesures adaptées au constituant atmosphérique que l'on veut déterminer (c'est-à-dire comportant une forte signature spectrale de ce paramètre), l'épaisseur optique $\tau_{\bar{\nu}}(z)$ d'absorption entre le niveau z et le sommet de l'atmosphère contient l'information sur la concentration du constituant absorbant et ses propriétés spectroscopiques. Si la mesure est suffisamment résolue pour conserver l'information sur la forme des raies d'absorption, une information sur la distribution verticale du constituant pourra être dérivée : comme nous l'avons vu, les mesures proches du centre des raies correspondent à de l'information sur les plus hauts niveaux de l'atmosphère, et les mesures sur les ailes des raies fournissent de l'information sur les niveaux les plus bas. Ainsi, si le profil de température est connu, la quantité de gaz absorbant pourra être déduite des mesures. De la même manière, lorsque les signatures spectrales correspondent à des gaz dont la concentration est connue (le CO_2 par exemple), le profil de température pourra être inversé.

Dans le domaine de la télédétection, le transfert radiatif correspond au problème direct. Si nous appelons $y(\nu)$ le rayonnement mesuré au nombre d'onde ν et $x(z)$ la concentration du constituant étudié – ou toute autre variable géophysique – en z (où z représente une coordonnée spatiale, l'altitude par exemple), alors l'équation générale du transfert radiatif peut s'écrire de la manière suivante :

$$y(\nu) = \int K(\nu, z) x(z) dz \quad (2.15)$$

avec $K(\nu, z)$ le noyau de l'observation.

Le problème inverse est de retrouver $x(z)$ à partir de la mesure $y(\nu)$ et d'un noyau $K(\nu, z)$ spécifié. C'est un problème extrêmement complexe qui n'est pas entièrement défini par la mesure et est pour cette raison dit mal posé. Une solution unique ne peut en effet pas être déterminée à partir de la mesure seule. Le problème revient donc à définir le domaine dans lequel se trouve la solution réelle et à trouver la solution la plus probable compte tenu d'un certain nombre de critères définis. D'autre part, la mesure effectuée étant discrète (m mesures) et l'inconnue étant une fonction continue, l'équation 2.15 est sous-contrainte. L'équation 2.15 est discrétisée en définissant l'état recherché sur n niveaux ($x(z_i)$, $i = 1, \dots, n$) et peut s'écrire :

$$y(\nu) = \sum_{i=1}^n q_i K(\nu_k, z_i) x(z_i) \quad (2.16)$$

avec $q_i, i = 1, \dots, n$ les poids de l'intégration numérique.

L'information contenue dans les mesures est fortement limitée par les caractéristiques de l'instrument de mesure : sa résolution spectrale, sa géométrie d'observation, le bruit associé aux mesures. Ainsi, même si l'on s'arrange pour avoir une inconnue et une mesure de même dimension ($m = n$), le rang p de $K(\nu, z)$ est bien souvent inférieur à la dimension de la mesure car il existe de l'information redondante dans la mesure. Le problème est

donc toujours sous-contraint : $p < m = n$. Dans le cas idéal où les 3 quantités ont la même dimension ($p = m = n$), le problème reste mal posé et une solution exacte n'est pas stable [Rodgers, 2000].

Afin de contraindre le problème, la mesure est combinée à une information additionnelle déterminée par notre connaissance *a priori* de la solution, qui peut être issue d'une climatologie ou d'une prévision des paramètres à estimer issue d'un modèle. Le type de contrainte utilisé, et la manière dont celle-ci est imposée, détermine la méthode d'inversion. La plupart des méthodes déterminent la solution en minimisant une fonction de coût qui comprend un terme calculant la distance entre la mesure et la solution, et un terme calculant la contrainte imposée à la solution.

La capacité d'un instrument à observer une variable dépend donc à la fois des caractéristiques de l'instrument (et de ses mesures) et de la méthode d'inversion développée. Le système d'observation total comprend donc l'instrument et l'algorithme d'inversion associé.

Le but de cette partie est de poser le formalisme qui sera utilisé tout au long de cette thèse et d'exposer de manière très générale la théorie fondamentale de l'inversion. Nous nous baserons ici sur le formalisme utilisé par Rodgers [1976, 1990, 2000], qui est indépendant de la méthode d'inversion choisie.

2.2.1 Formalisme classique du problème inverse

Les problèmes directs et inverses

En utilisant une notation vectorielle, le problème direct peut s'écrire :

$$\mathbf{y} = \mathbf{f}(\mathbf{x}, \mathbf{b}) + \varepsilon \quad (2.17)$$

où \mathbf{y} représente le vecteur comprenant les mesures, \mathbf{x} le vecteur d'état à déterminer, \mathbf{f} la fonction directe du transfert radiatif, \mathbf{b} les paramètres autres que \mathbf{x} ayant un impact sur la mesure, et ε le bruit associé aux mesures. Le vecteur \mathbf{b} inclut tous les paramètres définissant l'état de l'atmosphère (profils verticaux de la température atmosphérique, de la vapeur d'eau et des autres constituants atmosphériques, nuages, aérosols, *etc.*), les propriétés radiatives de la surface de la Terre (émissivité et température), ainsi que les caractéristiques de l'instrument (fonction de réponse spectrale et résolution).

Le problème inverse consiste à calculer $\hat{\mathbf{x}}$, une estimation de l'état réel recherché \mathbf{x} , à partir de la mesure \mathbf{y} et de l'estimation $\hat{\mathbf{b}}$ des paramètres \mathbf{b} . Il peut s'écrire :

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{x}} &= \mathbf{R}(\mathbf{y}, \hat{\mathbf{b}}) \\ &= \mathbf{R}(\mathbf{f}(\mathbf{x}, \mathbf{b}) + \varepsilon, \hat{\mathbf{b}}) \end{aligned} \quad (2.18)$$

où \mathbf{R} représente la fonction de transfert inverse. Comme précédemment discuté, une information *a priori* \mathbf{x}_a est nécessaire pour permettre la résolution du problème inverse. D'autre part, la méthode d'inversion peut nécessiter des paramètres supplémentaires qui ne sont pas compris dans le problème direct, regroupés dans un vecteur \mathbf{w} . Le problème inverse s'écrit donc plutôt

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{x}} &= \mathbf{R}(\mathbf{y}, \hat{\mathbf{b}}, \mathbf{x}_a, \mathbf{w}) \\ &= \mathbf{R}(\mathbf{f}(\mathbf{x}, \mathbf{b}) + \varepsilon, \hat{\mathbf{b}}, \mathbf{x}_a, \mathbf{w}) \end{aligned} \quad (2.19)$$

La fonction \mathbf{R} peut être considérée comme une fonction de transfert entre l'état réel \mathbf{x} et l'état observé $\hat{\mathbf{x}}$, qui décrit l'ensemble du système d'observation, c'est-à-dire à la fois l'instrument et la méthode d'inversion.

La complexité du problème direct rend la connaissance exacte de la fonction \mathbf{f} impossible. Aussi, un modèle direct est utilisé :

$$\mathbf{F}(\mathbf{x}, \mathbf{b}) \simeq \mathbf{f}(\mathbf{x}, \mathbf{b}, \mathbf{b}') \quad (2.20)$$

où \mathbf{b}' comprend tous les termes de la fonction directe qui sont ignorés ou méconnus dans le modèle direct. Par souci de simplicité, nous considérerons ici que le modèle direct est de très bonne qualité, et l'erreur associée $\Delta \mathbf{f} = \mathbf{f}(\mathbf{x}, \mathbf{b}, \mathbf{b}') - \mathbf{F}(\mathbf{x}, \mathbf{b})$ négligeable devant les autres sources d'incertitude intervenant dans l'inversion.

Caractérisation des problèmes

La linéarisation des équations permet de caractériser l'observation d'une part et l'inversion d'autre part. La linéarisation du problème direct autour d'un état de référence \mathbf{x}_0 est réaliste si $\mathbf{f}(\mathbf{x})$ est linéaire à l'intérieur des barres d'erreur de l'inversion. Nous prenons ici l'état *a priori* comme état de référence si bien que $\mathbf{x}_0 = \mathbf{x}_a$, avec $\mathbf{b}_0 = \hat{\mathbf{b}}$, l'estimation de \mathbf{b} . Nous obtenons alors :

$$\mathbf{y} = \mathbf{F}(\mathbf{x}_a, \hat{\mathbf{b}}) + \frac{\partial \mathbf{F}(\mathbf{x}, \hat{\mathbf{b}})}{\partial \mathbf{x}}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \frac{\partial \mathbf{F}(\mathbf{x}, \hat{\mathbf{b}})}{\partial \mathbf{b}}(\mathbf{b} - \hat{\mathbf{b}}) + \varepsilon$$

ou

$$\mathbf{y} = \mathbf{F}(\mathbf{x}_a, \hat{\mathbf{b}}) + \mathbf{K}_x(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{K}_b(\mathbf{b} - \hat{\mathbf{b}}) + \varepsilon \quad (2.21)$$

Cette équation introduit les fonctions de poids ou Jacobiens $\mathbf{K}_x = \partial \mathbf{F}(\mathbf{x}, \hat{\mathbf{b}}) / \partial \mathbf{x}$ et $\mathbf{K}_b = \partial \mathbf{F}(\mathbf{x}, \hat{\mathbf{b}}) / \partial \mathbf{b}$, décrivant respectivement la sensibilité du modèle direct à l'état \mathbf{x} et aux paramètres du modèle direct \mathbf{b} . L'équation 2.19 donne alors :

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{R}[\mathbf{F}(\mathbf{x}_a, \hat{\mathbf{b}}) + \mathbf{K}_x(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{K}_b(\mathbf{b} - \hat{\mathbf{b}}) + \varepsilon, \hat{\mathbf{b}}] \quad (2.22)$$

La linéarisation du modèle inverse par rapport à \mathbf{y} donne ensuite

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{R}[\mathbf{F}(\mathbf{x}_a, \hat{\mathbf{b}}), \hat{\mathbf{b}}] + \mathbf{G}_y[\mathbf{K}_x(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{K}_b(\mathbf{b} - \hat{\mathbf{b}}) + \varepsilon] \quad (2.23)$$

où $\mathbf{G}_y = \partial \mathbf{R} / \partial \mathbf{y}$ représente la sensibilité de l'inversion à la mesure \mathbf{y} (ou gain du modèle inverse). Finalement, le modèle inverse linéarisé peut s'écrire :

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{x}} - \mathbf{x}_a &= \mathbf{R}[\mathbf{F}(\mathbf{x}_a, \hat{\mathbf{b}}), \hat{\mathbf{b}}] - \mathbf{x}_a \dots \\ &+ \mathbf{A}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) \dots \\ &+ \mathbf{G}_y \varepsilon_y \end{aligned} \quad (2.24)$$

Le premier terme de cette équation représente le biais éventuel associé à la méthode d'inversion, qui correspond à l'erreur d'inversion d'un état connu \mathbf{x}_a , avec une mesure correspondante simulée sans bruit. Pour une méthode d'inversion fiable, ce terme doit rester proche de zéro.

Le second terme représente la manière dont le système d'observation (instrument et méthode d'inversion) lisse la quantité recherchée. La matrice \mathbf{A} représente la sensibilité de l'inversion à l'état réel et caractérise donc le système d'observation :

$$\mathbf{A} = \mathbf{G}_y \mathbf{K}_x = \frac{\partial \hat{\mathbf{x}}}{\partial \mathbf{x}} \quad (2.25)$$

En l'absence de biais, la quantité inversée correspond à l'*a priori* corrigé de la différence entre l'état réel et l'état *a priori* pondérée par \mathbf{A} , qui représente l'information apportée par la mesure :

$$\begin{aligned}\hat{\mathbf{x}} &= \mathbf{x}_a + \mathbf{A}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{G}_y \varepsilon_y \\ &= (\mathbf{I}_n - \mathbf{A})\mathbf{x}_a + \mathbf{A}\mathbf{x} + \mathbf{G}_y \varepsilon_y\end{aligned}\tag{2.26}$$

Dans le cas de l'inversion d'un profil sur n niveaux atmosphériques d'une variable géophysique, les lignes de \mathbf{A} représentent des fonctions de lissage, appelées noyaux (*averaging kernels* en anglais). Dans le cas idéal, \mathbf{A} est une matrice identité \mathbf{I}_n . Cependant, les noyaux sont généralement plus étalés, avec un pic au niveau où l'inversion est la plus sensible, dont la largeur à mi-hauteur donne une idée de la résolution verticale qui peut être atteinte. L'aire des noyaux est proche de l'unité avec un maximum au voisinage du niveau recherché pour les inversions de bonne qualité. L'utilisation des noyaux permet donc une bonne caractérisation des inversions.

Enfin, le dernier terme de l'équation 2.24 représente l'erreur associée aux différentes incertitudes, avec $\varepsilon_y = \mathbf{K}_b(\mathbf{b} - \hat{\mathbf{b}}) + \varepsilon$.

L'analyse de chacun des termes du problème inverse linéarisé permet donc une caractérisation précise de l'inversion et de l'erreur associée à partir du calcul des matrices fondamentales \mathbf{K}_x , \mathbf{G}_y et \mathbf{A} [Rodgers, 1990; Rodgers, 2000]. Une telle analyse est nécessaire pour permettre l'utilisation et l'exploitation des inversions puisqu'elle renseigne sur leur résolution et leur précision. Elle peut être réalisée quelle que soit la méthode d'inversion développée.

Non-linéarité

La linéarité d'un problème inverse peut être caractérisée de la manière suivante [Rodgers, 2000] :

Linéaire : problème direct qui peut se mettre sous la forme $\mathbf{y} = \mathbf{K}\mathbf{x}$ et pour lequel chaque *a priori* est de type Gaussien. En pratique, très peu de problèmes sont réellement linéaires.

Quasi-linéaire : problème non-linéaire mais pour lequel une linéarisation autour d'un état donné permet de trouver une solution. Ce type de problèmes est considéré comme linéaire dans la précision des mesures ou dans la précision requise de la solution, à l'intérieur des bornes normales de variation de l'état.

Modérément non-linéaire : problème pour lequel la linéarisation est appropriée pour l'analyse de l'erreur, mais non pour inverser la solution. Beaucoup de problèmes sont de ce type.

Excessivement non-linéaire : problème non-linéaire même à l'intérieur du domaine de l'erreur. Les problèmes avec des contraintes d'inégalité sont de ce type si la solution se trouve aux limites.

L'inversion de constituants atmosphériques à partir d'observation au nadir dans l'IR est connue pour être un problème non-linéaire. Nous considérerons ce problème comme modérément non-linéaire (une justification sera apportée au chapitre 4).

La caractérisation exposée ci-dessus s'applique aux problèmes modérément non-linéaires lorsqu'ils sont linéarisés de manière appropriée. Ainsi, les théories du contenu en information et de l'analyse d'erreur, qui seront exposées ultérieurement (dans le cadre des études

de sensibilité pour l'inversion de l'ozone IASI), restent également valables. La différence majeure entre ce type de problème et les problèmes linéaires ou quasi-linéaires est qu'une expression générale explicite pour la localisation de la solution optimale n'existe pas, elle doit être trouvée de manière numérique ou itérative.

2.2.2 Théorie de l'inversion

L'approche la plus couramment utilisée est l'approche probabiliste Bayésienne, qui fait intervenir la notion de maximum de vraisemblance. La mesure effectuée par l'instrument et notre connaissance *a priori* ne sont pas parfaites, une erreur doit leur être associée. Pour cela, il est préférable d'utiliser la notion de densité de probabilité plutôt que la valeur exacte pour l'inversion. Le problème inverse consiste donc, dans un premier temps, à déterminer la densité de probabilité de l'état \mathbf{x} recherché après la mesure \mathbf{y} , $P(\mathbf{x}|\mathbf{y})$, connaissant la densité de probabilité *a priori* de l'état, $P(\mathbf{x})$, et $P(\mathbf{y}|\mathbf{x})$ la densité de probabilité d'une mesure étant donné un état \mathbf{x} , en utilisant le théorème de Bayes :

$$P(\mathbf{x}|\mathbf{y}) = \frac{P(\mathbf{y}|\mathbf{x})P(\mathbf{x})}{P(\mathbf{y})} \quad (2.27)$$

Le cas le plus probable est ensuite sélectionné. Il correspond à la valeur de \mathbf{x} qui maximise $P(\mathbf{x}|\mathbf{y})$ ou minimise l'opposé de son logarithme. L'inversion repose donc souvent sur un problème de minimisation d'une fonction de coût, qui dépend de la méthode choisie.

Beaucoup d'algorithmes d'inversion utilisent la méthode d'estimation optimale [Rodgers, 1976; Rodgers, 2000], que nous appellerons ici méthode "classique". Elle est directement liée au formalisme classique exposé ci-dessus. Un *a priori* explicite sur la quantité à inverser est utilisé pour chaque inversion et les densités de probabilité sont de type Gaussien (ou au moins symétriques). Elle permet une inversion linéaire ou non-linéaire. La fonction de coût à minimiser s'écrit (en omettant les termes constants) :

$$\begin{aligned} \mathcal{C} &= -\ln P(\mathbf{x}|\mathbf{y}) \\ &= -\ln \left(\frac{P(\mathbf{y}|\mathbf{x})P(\mathbf{x})}{P(\mathbf{y})} \right) \\ &= (\mathbf{y} - \mathbf{K}\mathbf{x})^T \mathbf{S}_e^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{K}\mathbf{x}) + (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)^T \mathbf{S}_a^{-1} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) \end{aligned} \quad (2.28)$$

où \mathbf{S}_e représente la matrice de covariance des erreurs sur les simulations du modèle direct ainsi que sur les mesures, et \mathbf{S}_a représente la variabilité naturelle de l'état, autour d'un état *a priori* \mathbf{x}_a .

2.2.3 Les réseaux de neurones pour l'inversion

Dans le cadre de la préparation de la mission IASI, les techniques des réseaux de neurones (RN) ont été choisies pour développer l'algorithme d'inversion des concentrations d'O₃, de CH₄ et de CO à partir de mesures infrarouges, en utilisant plusieurs paramètres géophysiques additionnels. Les RN permettent la modélisation statistique de fonctions de transfert non-linéaires très complexes. Ces techniques sont d'autres part facilement adaptables et très efficaces en phase opérationnelle, propriétés nécessaires pour le traitement de mesures satellitaires. Depuis la fin des années 1980, plusieurs travaux ont démontré que les

RN multi-couches directs (avec une ou plusieurs couches cachées) peuvent être considérés comme une classe d'approximateurs universels : ils peuvent approcher n'importe quelle fonction continue uniformément sur n'importe quel ensemble compact (ils peuvent estimer les valeurs de ces fonctions à n'importe quel point, à un niveau de précision désiré) tant que le RN comporte suffisamment de degrés de liberté (neurones) [Hornik et al., 1989; Blum and Li, 1991; Thiria et al., 1993]. Différentes études ont montré que les perceptrons multicouches (PMC) sont adaptés à la résolution de problèmes inverses non-linéaires en géophysique [Chevallier et al., 2000; Richaume et al., 2000; Aires et al., 2001].

Des études sont menées au Service d'Aéronomie depuis 1995 sur la possibilité de restituer des quantités intégrées ou des profils de constituants traces de l'atmosphère à partir de mesures au nadir dans l'IR thermique en utilisant des réseaux de neurones [Clerbaux et al., 1995]. Les premiers développements importants ont été réalisés par Juliette Hadji-Lazaro au cours de sa thèse [Hadji-Lazaro et al., 1999; Hadji-Lazaro, 1999] sur l'inversion de colonnes totales de monoxyde de carbone à partir de mesures IMG. Un travail d'inter-comparaison de différents algorithmes d'inversion du CO mené à l'issue de ces premières études a permis de montrer les bonnes performances des réseaux de neurones [Clerbaux et al., 2002]. Ces études se poursuivent actuellement pour l'inversion du CO, mais aussi de l'ozone et du méthane à partir de mesures IASI. L'objectif de cette thèse est l'inversion de l'ozone. Nous ne détaillerons donc que les études sur cette molécule dans ce manuscrit. Pour plus de détails sur le CO et le CH₄, le lecteur est invité à consulter Hadji-Lazaro et al. [1999], Clerbaux et al. [2003] et Turquety et al. [2003].

Le principe des réseaux de neurones peut être rapproché de l'estimation optimale et du formalisme classique. Les deux méthodes reposent sur la minimisation d'une fonction de coût. La fonction $P(\mathbf{x}|\mathbf{y})$ peut être obtenue en utilisant un ensemble d'observations $\{\mathbf{y}^p\}$, $p = 1, \dots, N$ pour lesquelles l'état correspondant \mathbf{x}^p est connu. En considérant la fonction inverse $\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{R}(\mathbf{y}^p, \hat{\mathbf{b}}^p, \mathbf{W})$ avec \mathbf{W} l'ensemble des paramètres du modèle (réseau de neurones), la fonction de coût peut alors s'écrire :

$$\begin{aligned} \mathcal{C} &= -\ln \prod_{p=1}^N P(\mathbf{x}^p|\mathbf{y}^p) \\ &= \sum_{p=1}^N (\mathbf{R}(\mathbf{y}^p, \hat{\mathbf{b}}^p, \mathbf{W}) - \mathbf{x}^p)^T \hat{\mathbf{S}}^{-1} (\mathbf{R}(\mathbf{y}^p, \hat{\mathbf{b}}^p, \mathbf{W}) - \mathbf{x}^p) \end{aligned} \quad (2.29)$$

souvent simplifiée en pratique en considérant $\hat{\mathbf{S}}$ diagonale pour toutes les observations, si bien que son influence sur la minimisation disparaît :

$$\begin{aligned} \mathcal{C} &= \frac{1}{2} \sum_{p=1}^N (\mathbf{R}(\mathbf{y}^p, \hat{\mathbf{b}}^p, \mathbf{W}) - \mathbf{x}^p)^2 \\ &= \frac{1}{2} \sum_{p=1}^N (\hat{\mathbf{x}}^p - \mathbf{x}^p)^2 \\ &= \sum_{p=1}^N \mathcal{C}_p \end{aligned} \quad (2.30)$$

La différence fondamentale entre cette méthode et celle de l'estimation optimale réside dans cette fonction de coût. L'équation 2.30 définit \mathcal{C} par rapport à la distance dans

l'espace des sorties, alors que l'équation 2.28 se place également dans l'espace des entrées (1^{er} terme). L'estimation optimale requiert donc une connaissance explicite du modèle direct et de l'état *a priori* pour chaque inversion, alors que cette connaissance est globale dans le cas des RN. Elle est fournie par un ensemble contenant à la fois les observations et les états correspondants $\{(\mathbf{y}^p, \hat{\mathbf{b}}^p), \mathbf{x}^p\}$, qui permet d'estimer les paramètres \mathbf{W} de manière optimale. Les réseaux de neurones permettent ainsi de modéliser une fonction globale, applicable à toutes les observations, alors que les méthodes classiques déterminent une solution localement optimale à chaque mesure.

Une description complète de la méthode d'inversion, ainsi que le travail de caractérisation des inversions et d'analyse de l'erreur, réalisé en se référant au formalisme classique, sont présentés au chapitre 4.

Chapitre 3

L'instrument IASI

L'instrument IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) [*Cayla and Javelle*, 1995; *Chalon et al.*, 2001; *Phulpin et al.*, 2002] est un instrument développé par le CNES (Centre National d'Etudes Spatiales) pour EUMETSAT (EUropean organization for the exploitation of METeorological SATellites). C'est un spectromètre à transformée de Fourier qui enregistre en visée au nadir le rayonnement émis par la surface de la Terre et par l'atmosphère dans le domaine spectral de l'infrarouge thermique (IR) conçu dans le but d'observer la troposphère et la basse stratosphère pour la prévision météorologique opérationnelle et l'étude du climat et de la chimie atmosphérique. Le signal reçu dans l'espace contient en effet la signature des différents constituants atmosphériques qui absorbent ou émettent dans l'IR (les gaz à effet de serre).

Il fera partie des instruments embarqués sur les satellites METOP, développés par l'Agence Spatiale Européenne (ASE) et exploités par EUMETSAT, dont trois lancements successifs sont prévus en 2005, 2010 et 2015. Outre les trois instruments à bord des satellites, le système IASI comprend un logiciel de traitement de données intégré dans le segment sol de l'EPS (EUMETSAT Polar System) et un centre d'expertise technique implémenté au CNES à Toulouse.

Après une présentation rapide du principe de mesure d'un spectromètre à transformée de Fourier, nous allons dans ce chapitre introduire la mission IASI et ses objectifs ainsi que les caractéristiques principales de l'instrument. Nous allons également décrire l'instrument IMG (Interferometric Monitor for Greenhouse Gases), précurseur de IASI.

3.1 La spectrométrie à transformée de Fourier

Les spectromètres à transformée de Fourier tels que IMG et IASI sont basés sur le principe de l'interféromètre de Michelson, schématisé sur la figure 3.1. Le rayonnement incident arrive sur une lame séparatrice qui divise le faisceau en deux. L'un des faisceaux continue vers un miroir fixe alors que l'autre est dévié vers un miroir mobile, ce qui introduit une différence de chemin optique δ entre les rayons. Après réflexion sur les deux miroirs, les rayons reviennent vers la lame séparatrice. Les faisceaux se recombinaient (en interférant l'un avec l'autre), avec une intensité maximale lorsque les faisceaux sont en phase. Le rayonnement est ensuite transmis à travers la lame séparatrice vers le détecteur. Le signal détecté après interférence des deux faisceaux varie en fonction de la différence de chemin optique introduite entre les rayons. Une mesure de l'intensité du rayonnement en

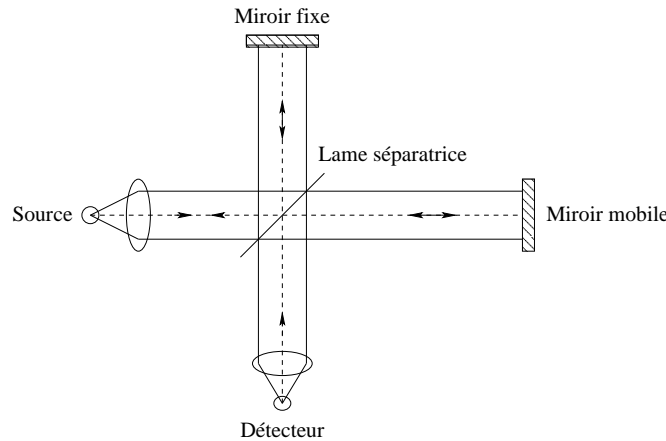


FIG. 3.1 – Schéma optique d'un interféromètre de Michelson.

fonction de la différence de chemin optique, produisant un signal appelé interférogramme, est alors obtenu.

Un spectre (intensité en fonction du nombre d'onde) est ensuite obtenu par transformée de Fourier de l'interférogramme. Si on appelle $I_{inter}(\delta)$ l'intensité du rayonnement mesuré en fonction de la différence de marche δ , alors le spectre correspondant sera, dans le cas d'un rayonnement continu (en réalité il y a échantillonnage des différences de marche) :

$$B(\nu) = \int_{-x}^x I_{inter}(\delta) \cos(2\pi \delta \nu) d\delta = 2 \int_0^x I_{inter}(\delta) \cos(2\pi \delta \nu) d\delta$$

Cette équation représente un spectre idéal complet, supposant une différence de marche pouvant aller à l'infini. En pratique, le déplacement du miroir est évidemment limité, et la résolution finie. La résolution $\Delta\nu$ de l'interféromètre est déterminée par le déplacement maximal du miroir mobile Δ :

$$\Delta\nu = \frac{1}{\Delta}$$

Cette limitation revient à multiplier l'interférogramme idéal par une fonction carrée $D(\delta)$ telle que

$$\begin{aligned} D(\delta) &= 1 \text{ pour } -\Delta \leq \delta \leq \Delta \\ D(\delta) &= 0 \text{ sinon} \end{aligned}$$

La transformée de Fourier de cette fonction, dite fonction d'appareil ou fonction d'auto-apodisation, présente cependant de nombreuses oscillations qui modifient les propriétés du spectre. En pratique, afin d'estomper ces déformations dont nous ne maîtrisons pas les caractéristiques, les spectres sont convolués par une fonction connue de largeur plus importante que la résolution spectrale et dite fonction d'apodisation, au cours d'une procédure dite d'apodisation. Le choix de la fonction d'apodisation résulte d'un compromis entre diminution des oscillations dues à la fonction d'appareil et conservation de la résolution spectrale.

3.2 La mission IASI

L'instrument IASI fait partie de la nouvelle génération d'instruments optiques embarqués dans l'espace pour l'observation de la Terre. Il est conçu pour mesurer des spectres atmosphériques dans l'infrarouge thermique et comprend un spectromètre à transformée de Fourier associé à un imageur. La phase de développement de l'instrument a commencé en 1998. Sa conception et son exploitation sont réalisées en collaboration par le CNES et EUMETSAT : le CNES est responsable de la gestion technique de l'instrument, du développement du logiciel de traitement des données et du centre d'expertise technique, et EUMETSAT est responsable du lancement de IASI ainsi que du traitement et de la distribution des données opérationnelles.

Les données des autres instruments présents sur la plate-forme METOP, indiqués dans le tableau 3.1 (figure 3.2), pourront être utilisés en complément des mesures IASI.

TAB. 3.1 – *Principaux instruments présents sur la plate-forme METOP1, leur domaine de mesure et leurs principaux objectifs (<http://www.esa.int/export/esaME/Instruments.html>).*

Instrument	Type	Domaine spectral	Variables mesurées
AMSU-A (Advanced Microwave Sounding Unit)	Sondeur	15 canaux, micro-ondes	Température
MHS (Microwave Humidity) Sounder)	Sondeur Imageur	5 canaux, micro-ondes 6 canaux, VIS	Humidité, eau liquide, couverture nuageuse
AVHRR-3 (Advanced Very High Resolution Radiometer)	Radiomètre imageur	1 canal, IR	Température de surface (océans), glace, neige, couverture végétale
HIRS (High Resolution Infrared Sounder)	Sondeur	19 canaux, IR 1 canal, VIS	Profils température, humidité
GOME-2 (Global Ozone Monitoring Experiment)	Spectromètre	4 canaux, UV-VIS	Colonnes totales NO ₂ , SO ₂ , BrO, OClO, CH ₂ O, profils O ₃
ASCAT (Advanced SCATterometer)	Diffusiomètre	micro-ondes	Vitesse et direction du vent (océans)
GRAS (Global navigation satellite systems Receiver for Atmospheric Sounding)	Récepteur GPS	ondes radio	GPS/navigation, profils température, pression, humidité

Suite à l'appel d'offre CNES-EUMESAT pour la préparation de la mission IASI en 1995, une vingtaine d'équipes ont été sélectionnées afin de former le groupe de travail ISSWG (IASI Sounding Science Working Group). Un premier bilan des objectifs scientifiques de la mission IASI a été réalisé en 1998 [*IASI Science Plan*, 1998] et l'état d'avancement des travaux du groupe, et de la mission IASI de manière générale, est

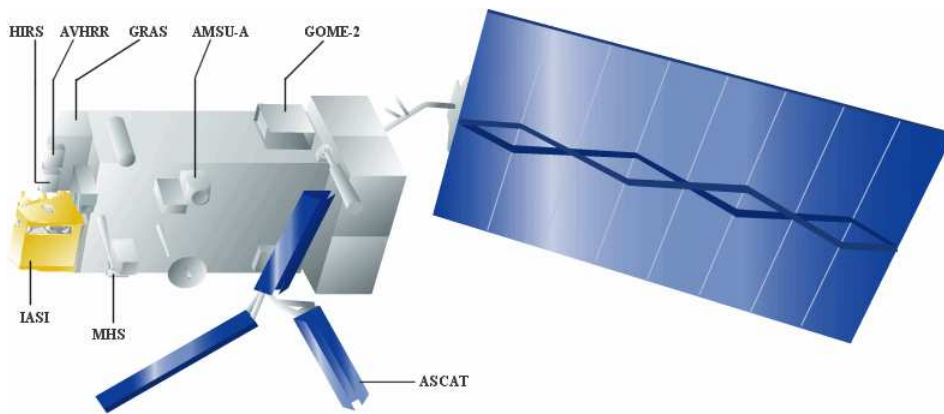


FIG. 3.2 – Configuration du satellite METOP. (<http://www.esa.int/export/esaME/index.html>)

régulièrement communiqué par le biais du site internet dédié à l'instrument à l'adresse <http://smc.cnes.fr/IASI/index.htm>.

La proposition du Service d'Aéronomie (SA) sur les études du climat et de la chimie en utilisant IASI (*Chemistry and climate related studies using the IASI remote sensor*), réalisée en association avec d'autres laboratoires français (Laboratoire de Physique Moléculaire et Applications — LPMA, Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement — LSCE) et belges (Laboratoire de Chimie Physique Moléculaire, Université Libre de Bruxelles — ULB, Institut d'Aéronomie Spatiale de Belgique — IASB, Groupe IR de Physique Atmosphérique et Solaire, Université de Liège — ULg), a en particulier été retenue. Elle se divise en 6 projets :

1. Inversion (SA, LPMA) : Développement d'algorithmes d'inversion pour les instruments en visée au nadir ; Sélection des canaux spectraux et études de sensibilité ; Comparaison et validation en utilisant les spectres IMG [Clerbaux et al., 1995; Clerbaux et al., 1998; Payan et al., 1998; Clerbaux et al., 1999; Hadji-Lazaro et al., 1999; Clerbaux et al., 2002; Turquety et al., 2002a; Turquety et al., 2002b; Turquety et al., 2003].
2. Forçage radiatif (LSCE, SA) : Estimation directe du forçage radiatif [Chazette et al., 1998].
3. Validation (ULB, IASB, ULg) : Utilisation des systèmes de mesures au sol (en particulier à la station de Jungfraujoch) pour la validation [Coheur et al., 2003; Barret et al., 2002].
4. Études spectroscopiques (ULB) : Mesures en laboratoire pour améliorer les paramètres spectroscopiques [Coheur et al., 2001; Rothman et al., 2003].
5. Assimilation de données (SA) : Assimilation des quantités mesurées dans des modèles 3-D de chimie-transport atmosphériques [Clerbaux et al., 2001].
6. Aérosols et gaz traces minoritaires (IASB, ULB, SA, LSCE) : Étude de la possibilité de détecter les aérosols et les gaz traces de faible concentration [Kruglanski and De Mazière, 2002; Coheur et al., 2002; Clerbaux et al., 2003a].

Cette thèse s'intègre dans le projet 1 pour la restitution des concentrations d'ozone. L'utilisation des mesures restituées combinées aux informations disponibles sur l'équilibre

de l'atmosphère est également explorée et s'intègre dans le projet 5, même si l'assimilation dans un modèle de chimie atmosphérique n'est pas présentée dans ce manuscrit.

3.2.1 Géométrie d'observation IASI

IASI volera à bord des satellites météorologiques METOP en orbite héliosynchrone à 836 km d'altitude.

La géométrie de mesure IASI est représentée par la figure 3.3. La mesure au nadir est complétée par un balayage dans un plan perpendiculaire à la trace du satellite.

30 visées seront effectuées le long de la ligne de la mesure, espacées d'environ 3.3° et symétriques par rapport au nadir. Ainsi, l'axe optique peut pivoter d'un angle de -47.85° à $+47.85^\circ$ par rapport au nadir. En plus des 30 visées vers le sol, le balayage inclus des visées vers des cibles de calibration et le retour à la position de départ. En tout, chaque balayage dure 8 secondes. Le miroir à balayage utilisé permet d'autre part de viser la même scène pendant tout le temps de l'acquisition avant de passer à la mesure suivante. La fauchée (longueur au sol du balayage perpendiculaire à la trace du satellite), pour IASI, sera d'environ 2400 km.

Pour chaque acquisition, le champ angulaire total de l'instrument est conique, avec un angle au sommet de 3.3° (soit 50 km au sol pour une visée au nadir). Le signal mesuré est analysé par une matrice composée de 2×2 cellules circulaires correspondant à un angle de 1.25° , ce qui correspond au sol à des pixels circulaires de 12 km de diamètre dont les centres sont positionnés sur des lignes et des colonnes placées à $\pm 0.825^\circ$ de l'axe optique de l'instrument.

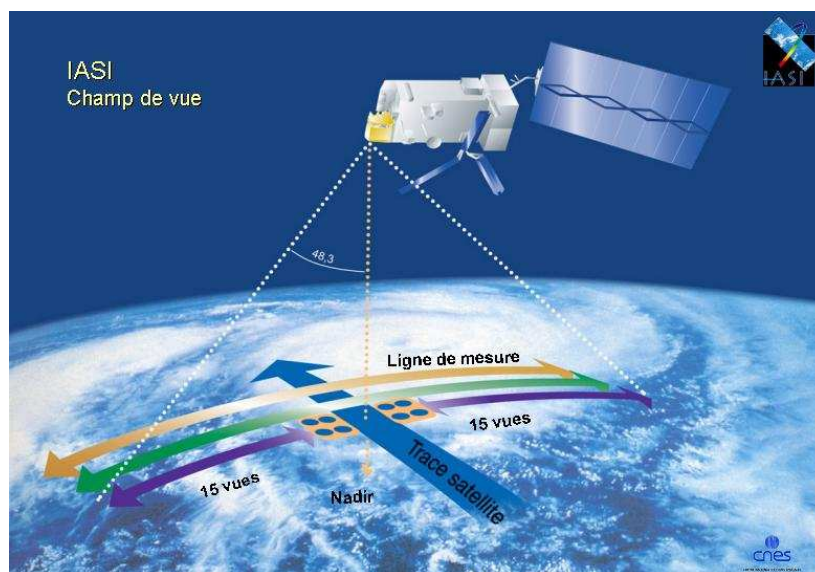


FIG. 3.3 – Schéma du champ de vue de l'instrument IASI.

3.2.2 Caractéristiques instrumentales

IASI mesure le rayonnement infrarouge dans un domaine spectral s'étendant de 645 à 2760 cm^{-1} , avec un échantillonnage spectral constant de 0.25 cm^{-1} . Son système d'ac-

quisition est montré sur la figure 3.4 :

- Un miroir à balayage permet tout d'abord d'orienter la direction de visée avec des contraintes géométriques et temporelles ;
- L'interféromètre, détaillé sur la figure 3.4, est l'élément clé de l'acquisition. Il divise l'onde plane incidente en deux ondes avant de les recombinaison après avoir introduit une différence de marche ;
- Des éléments optiques chauds transmettent le rayonnement incident à travers l'interféromètre vers la partie optique froide ;
- Des éléments optiques froids qui comportent un diaphragme du champ, définissent le champ de vue instantané par 4 trous circulaires, divisent le faisceau en 3 canaux et conduisent l'énergie vers les détecteurs ;
- Les trois détecteurs sont montés sur la partie arrière d'un radiateur cryogénique qui est refroidi à 95-100K.

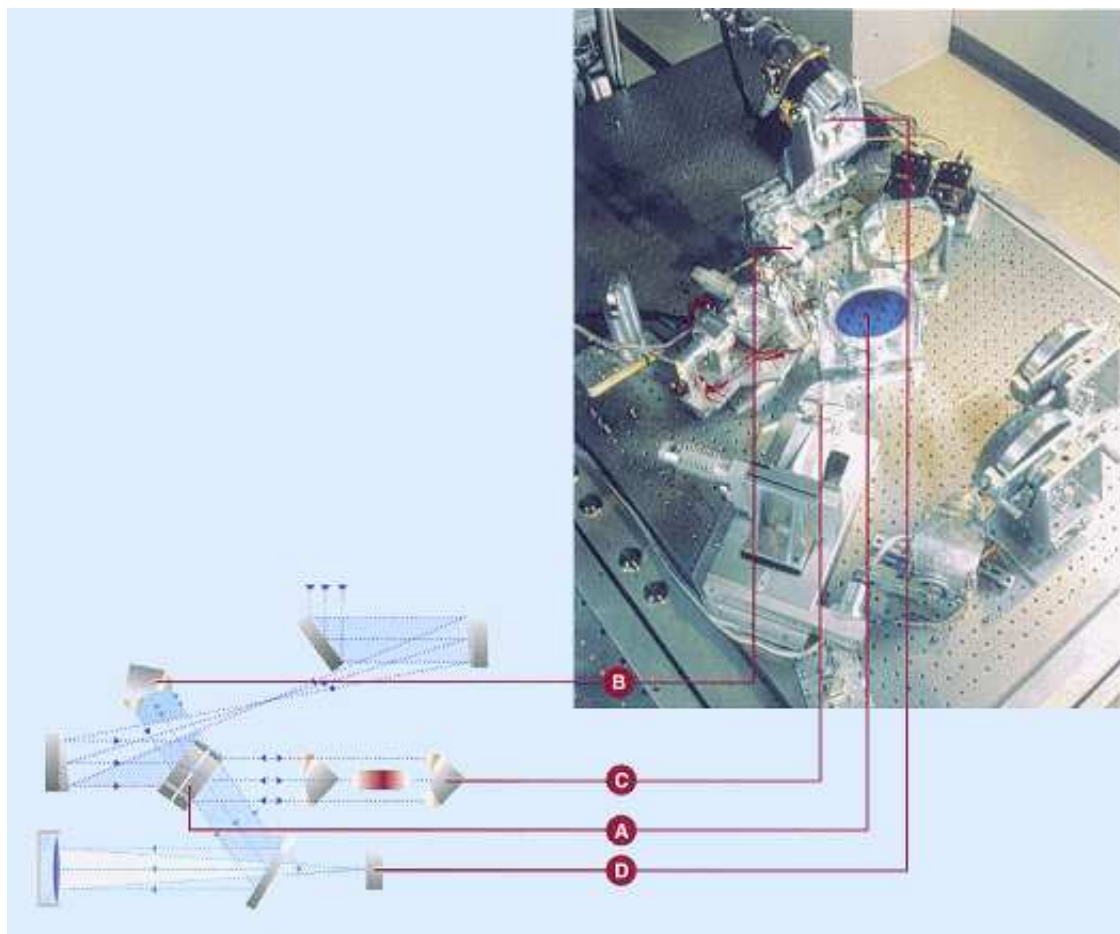


FIG. 3.4 – Schéma du système d'acquisition IASI. Les éléments de l'interféromètre sont détaillés à gauche, nous pouvons distinguer : la lame séparatrice en A, le miroir fixe en B, le miroir mobile en C et le détecteur en D. (<http://www.esa.int/export/esaME/index.html>, Chalon et al., [2001])

IASI est complété par un imageur qui est utilisé en combinaison avec l'instrument AVHRR pour la détection et la caractérisation des nuages présents dans le champ de visée de IASI.

Pour des raisons techniques, le domaine spectral couvert par IASI est divisé en trois bandes, avec un détecteur spécifique à chacune de ces bandes. Les caractéristiques spec-

trales de l'instrument sont détaillées dans le tableau 3.2 : la résolution spectrale et la précision radiométrique attendue, exprimée en différence de température équivalente (NEDT), ainsi que le type de détecteur utilisé pour chaque bande spectrale. L'expression du bruit radiométrique en terme de luminance est établit en utilisant l'expression du rayonnement du corps noir :

$$L_\nu(T) = \frac{c_1 \nu^3}{\exp(\frac{c_2 \nu}{T}) - 1} \quad (3.1)$$

où $c_1 = 2 h c^2$, $c_2 = h c/k$ et ν représente le nombre d'onde. L'incertitude en luminance en fonction de celle en température de brillance est donc :

$$\Delta L_\nu(T) = L_\nu(T) \left(\frac{c_2 \nu}{T^2} \right) \left(\frac{1}{1 - \exp(-\frac{c_2 \nu}{T})} \right) \Delta T \quad (3.2)$$

Le bruit en fonction du nombre d'onde est représenté sur la figure 3.5 en température de brillance et en luminance.

TAB. 3.2 – *Caractéristiques spectrales de l'instrument IASI.*

Bande	Intervalle spectral	Résolution	NEDT à 280 K	Nature du détecteur
1	645 - 1210 cm^{-1} (8.26 - 15.5 μm)	0.35 cm^{-1}	< 0.2 K	HgCdTe photoconducteur
2	1210 - 2000 cm^{-1} (5 - 8.26 μm)	0.45 cm^{-1}	< 0.3 K	HgCdTe photovoltaïque
3	2000 - 2760 cm^{-1} (3.62 - 5 μm)	0.55 cm^{-1}	< 0.35 K	InSb photovoltaïque

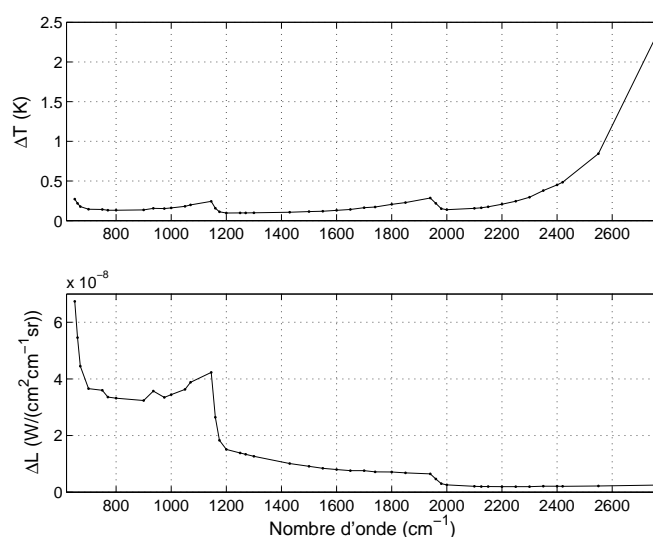


FIG. 3.5 – *Bruit radiométrique attendu pour l'instrument IASI, estimé à 280 K [Prunet et al., 2001], en température de brillance (en haut) et en luminance (en bas).*

Camy-Peyret et al. [2001] ont modélisé la fonction de réponse de l'instrument. Sa forme est représentée sur la figure 3.6. Elle représente à la fois la fonction d'appareil et

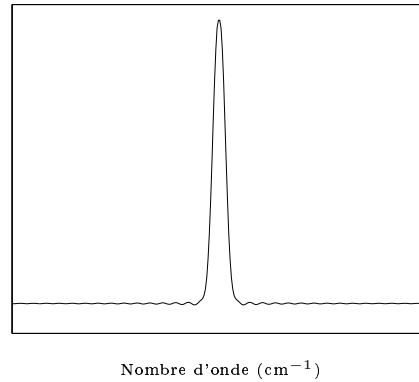


FIG. 3.6 – *Fonction de réponse de l'instrument IASI [Camy-Peyret et al., 2001].*

la fonction d'apodisation, permettant une simulation exacte de spectres IASI apodisés (niveau 1C).

Le tableau 3.3 résume les principales caractéristiques de l'instrument IASI et ses performances.

TAB. 3.3 – *Principales caractéristiques et performances de l'instrument IASI.*

Couverture	30 visées toutes les 8 s couverture globale 2 fois / jour
Champs de vues	4 pixels de 12 km de diamètre
Pixels / balayage	120
Fauchée	$\pm 48.3^\circ$ (1026 km au sol)
Intervalle spectrale	645 - 2760 cm ⁻¹
Échantillonnage spectral	8400 canaux (pas 0.25 cm ⁻¹)
Durée de vie	5 ans
Puissance	210 W
Taille	1.2×1.1×1.3 m ³
Masse	236 kg
Flux de données	1.5 Mbps

3.2.3 Les produits IASI

Le système de traitement IASI permet de générer des spectres atmosphériques calibrés à partir des interférogrammes mesurés.

Un premier traitement est effectué à bord du satellite : après réduction des données, les algorithmes corrigent les non-linéarités présentes lors de la détection, calculent l'inverse de la transformée de Fourier et réalisent une calibration radiométrique des spectres obtenus. Ces données forment les données de niveau 0. Elles sont envoyées au segment-sol qui réalise un traitement à trois niveaux : le niveau 1A comprend le décodage, la calibration

TAB. 3.4 – *Produits déduits des mesures IASI seules ou combinées aux mesures des autres instruments METOP (AVHRR, AMSU, MHS), avec la précision attendue selon les études de l'ISSWG. D'après http://smc.cnes.fr/IASI/GP_science.htm. Les références disponibles sont également précisées.*

Variable géophysique	Précision attendue	Résolution verticale	Échantillonnage horizontal
Profil de température ^a	1 K (conditions ciel clair ou nuages bas)	1 km	25 km (ciel clair)
Profil d'humidité ^a	10 % (conditions ciel clair ou nuages bas)	1 - 2 km (troposphère) (ciel clair)	25 km (ciel clair)
Colonne totale d'ozone ^{b,c}	> 5 % par pixel non-nuageux	–	25 km (ciel clair)
Distribution verticale ^{b,d} d'ozone	20 % 9 % 8 %	0 - 6 km 0 - 12 km 0 - 16 km	25 km
Colonne totale de CO ₂ ^{d,e}	10 % / pixel	–	25 km
Colonne totale de CH ₄ ^{d,f}	5 - 10 % / pixel	–	25 km
Colonne totale de N ₂ O	5-10 %	–	100 km
CO ₂ ^g	2 %	–	AD
SO ₂	AD	AD	AD
CFC12 ^h	10 %	–	100 km
CFC11 ^h , HCFC22 ^h	20 %	–	100 km
Couverture nuageuse	5 à 10 %	–	AD
Température au sommet des nuages	1 à 2 K (nuages épais)	–	AD
Altitude du sommet des nuages ou pression	200 - 300 m / 50 - 100 m (CLA) 50 (couverture 100 %)	– – –	AD
Épaisseurs optiques aérosols	AD	AD	AD
Température de surface mer	< 0.5 K (ciel clair)	–	25 km
Terre	1 K (ciel clair)	–	25 km
Emissivité de surface continentale	0.5 % (fenêtre spectrale) 1 % (canaux d'observation)	– –	25 km

^aPrunet et al. [2001] ;

^bCe travail de thèse ;

^cTurquety et al. [2002b] ;

^dTurquety et al. [2003] ;

^eHadji-Lazaro et al. [1999] et Hadji-Lazaro [1999] ;

^fClerbaux et al. [2003] ;

^gChedin et al. [2003] ;

^hCoheur et al. [2002], étude réalisée pour IMG mais applicable à IASI ;

AD : À définir, travaux en cours.

spectrale, la post-calibration radiométrique et l'enregistrement commun des données de IASI et AVHRR (localisation et date); le niveau 1B consiste au rééchantillonnage des spectres; et enfin le niveau 1C comprend l'apodisation des spectres et l'analyse des niveaux de luminance AVHRR dans les pixels IASI. Les données de niveau 1B et 1C seront à disposition des utilisateurs.

À partir de ces mesures, un certain nombre de variables géophysiques sont déduites, appelées données de niveau 2, en utilisant une procédure d'inversion des données de niveau 1. Le tableau 3.4 résume les différentes quantités qui seront observées par IASI, ainsi que la précision prévue pour les mesures utilisables, c'est-à-dire pour les mesures non-nuageuses ou partiellement nuageuses. Parmi ces inversions, les inversions météorologiques (température, humidité, pression en particulier) seront opérationnelles (c'est-à-dire réalisées en temps réel par le segment-sol de traitement des données). Les inversions d'O₃, de CO et de CH₄ seront également réalisées de manière opérationnelle.

3.3 Précurseur de IASI : IMG/ADEOS

L'instrument IMG (Interferometric Monitor for Greenhouse gases) a été développé par l'organisme JAROS (Japan Resources Observation System), en contrat avec le MITI (Ministry of International Trade and Industry) dans le but d'obtenir une vue globale des principaux paramètres atmosphériques [Kobayashi *et al.*, 1999a; Kobayashi *et al.*, 1999b]. Lancé le 17 août 1996 à bord du satellite ADEOS (ADvanced Earth Observing Satellite) par la NASDA (National Space Development Agency of Japan), il a cessé d'envoyer des données le 30 juin 1997, suite à la rupture du panneau solaire du satellite. Environ 8 mois de données sont cependant disponibles.

Les autres instruments dédiés à l'observation de la Terre présents sur ADEOS étaient :

- AVNIR (Advanced Visible and Near Infrared Radiometer) : observation de la végétation et des sols ;
- ILAS (Improved Limb Atmospheric Sounder) : mesures de l'ozone stratosphérique polaire ;
- NSCAT (NASA Scatterometer) : mesures de la direction et de la vitesse du vent ;
- OCTS (Ocean Color and Temperature Scanner) : mesures de la couleur de l'océan (chlorophylle et autres substances dissoutes) et de la température de surface de la mer ;
- POLDER (POLarization and Directionality of the Earth's Reflectances) : observation des aérosols, de la surface terrestre, des nuages et des océans ;
- RIS (Retroreflector In Space) : mesures actives de l'O₃, du CFC12, du CO₂ et du CH₄ ;
- TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) : mesures des colonnes totales d'ozone et des aérosols.

Le SA bénéficie d'un accès privilégié aux données IMG grâce au projet "Études troposphériques et stratosphériques en utilisant les sondeurs ADEOS" (coordinateur principal : Gérard Mégie, avec des contributions du SA, LPMA, LSCE) réalisé en réponse à l'appel d'offre NASDA/MITI pour IMG/ADEOS.

3.3.1 L'instrument IMG

Tout comme IASI, l'instrument IMG est basé sur le principe de l'interféromètre de Michelson. Son montage optique est représenté sur la figure 3.7. Les étapes d'acquisition des interférogrammes sont proches de celles de IASI :

- Le rayonnement IR est reçu sur un miroir qui permet de fixer un même point pendant tout le temps nécessaire à une acquisition ;
- L'interféromètre introduit ensuite une différence de chemin optique ;
- Le miroir collimateur fait converger les rayons vers les détecteurs ;
- Les détecteurs IR sont différents suivant le domaine de longueur d'onde. On distingue trois domaines différents : la bande 1 entre 2387 et 3030 cm^{-1} , la bande 2 entre 2000 et 2500 cm^{-1} , la bande 3 entre 600 et 2000 cm^{-1} (convention différente de celle de IASI).

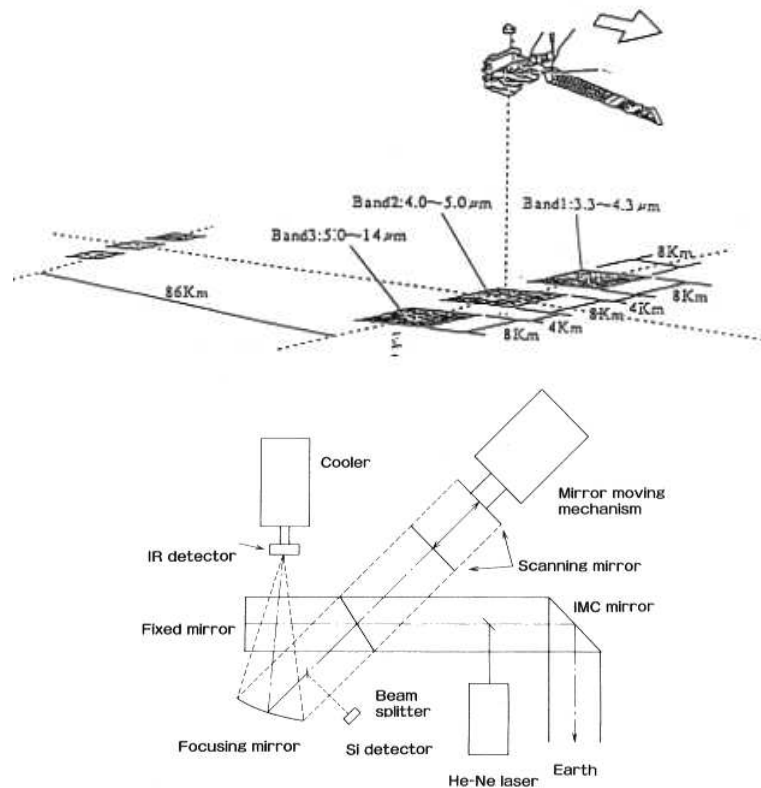


FIG. 3.7 – Principe de mesure de l'instrument IMG (champ de vue et schéma optique). (<http://www.eorc.nasda.go.jp/AtmChem/IMG/>)

La différence de chemin optique introduite est de 10 cm environ, ce qui correspond à une résolution spectrale de l'ordre de 0.1 cm^{-1} .

IMG a été conçu principalement dans le but d'observer l'atmosphère d'un point de vue chimique, l'accent a donc été mis sur la résolution spectrale plutôt que sur la couverture spatiale. Contrairement à IASI, l'observation se fait uniquement au nadir, il n'y a pas de balayage. L'acquisition d'un interférogramme se fait en dix secondes puis le miroir mobile revient à sa position initiale en trois secondes (pendant ce temps, l'empreinte du satellite parcourt 86 km à la surface de la Terre). Six mesures consécutives sont ainsi effectuées puis

suivent deux enregistrements de calibration pendant lesquels la trace du satellite parcourt 297 km à la surface de la Terre (la calibration se fait en utilisant le corps noir embarqué et l'espace profond). Ce cycle nécessite 110 secondes en tout. La taille du pixel au sol est de 8×8 km, avec un pixel par bande spectrale. Le satellite ADEOS a une période récurrente de 41 jours et fait le tour de la Terre en environ 1h 40. Une bonne couverture du globe est obtenue en 4 jours.

Le traitement des données IMG a été effectué en plusieurs étapes, similaires à celles prévues pour IASI : (1) Les interférogrammes mesurés par l'instrument constituent les données de niveau 0A. Ces données sont envoyées aux stations sol où elles sont rééchantillonnées et filtrées; (2) L'IMGDIS (IMG Data and Information System) réalise ensuite les corrections nécessaires sur les interférogrammes (niveau 0B) puis effectue la transformée de Fourier (niveau 1A) et la calibration (niveau 1B). Les données de niveau 1 sont donc des spectres de luminance; (3) Des tests de qualité sont ensuite effectués sur ces données afin d'éliminer les spectres dont la qualité est dégradée par un dysfonctionnement instrumental. Les spectres obtenus peuvent être inversés pour retrouver les profils de température et de concentration de gaz à effet de serre (données de niveau 2).

3.3.2 Adaptation à IASI

Les caractéristiques très proches de IMG et IASI permettent l'utilisation des mesures IMG pour la préparation de IASI. En effet, la résolution de IMG étant meilleure que celle de IASI, les spectres mesurés par IMG peuvent être adaptés aux caractéristiques de IASI.

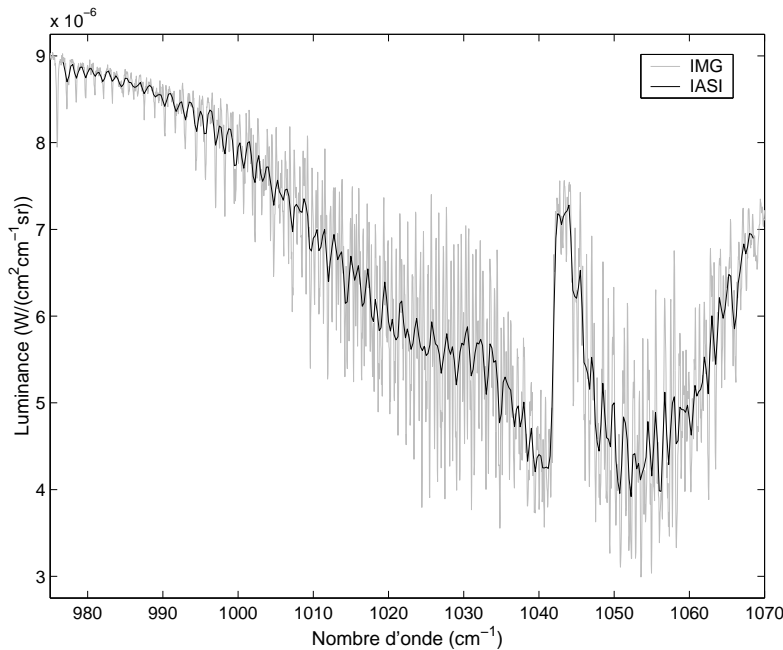


FIG. 3.8 – Spectre mesuré par IMG au-dessus du Pacifique ($75.24^{\circ}S, 28.82^{\circ}W$) le 4 avril 1994, à 04:00:42 GMT, dans la bande de l'ozone, avant et après convolution par la fonction d'instrument IASI.

Cette adaptation est réalisée en deux étapes : les spectres IMG sont rééchantillonnés puis convolués par la fonction de réponse de IASI (figure 3.6).

Le spectre IASI correspondant à un exemple de spectre IMG mesuré au-dessus du Pacifique Sud est représenté dans la région de la bande ν_3 de l’ozone sur la figure 3.8 (en luminance). La résolution de IASI étant environ 5 fois moins bonne que celle de IMG, les raies d’absorption sont moins bien définies. Une partie de l’information sur la distribution verticale de l’O₃ est donc perdue.

3.4 Conclusions

Nous avons, dans ce chapitre, décrit l’instrument et la mission IASI (CNES/EUMETSAT). IASI est un spectromètre haute résolution mesurant le rayonnement infrarouge en visée au nadir et permettant l’observation de la troposphère et de la basse stratosphère avec une très bonne couverture spatio-temporelle. Ses objectifs scientifiques sont principalement la météorologie opérationnelle et les études du climat et de la chimie atmosphérique.

Les travaux présentés dans ce manuscrit ont été réalisés dans le cadre des activités de l’ISSWG pour la préparation de cette mission. Ils s’intègrent en particulier dans les études du Service d’Aéronomie pour l’évaluation des capacités de IASI à mesurer les concentrations de gaz traces et pour le développement d’un algorithme opérationnel d’inversion de l’ozone et de ses précurseurs CO et CH₄. Les études et les développements décrits dans ce manuscrit ont donc été effectués en considérant les caractéristiques de l’instrument IASI.

L’instrument IMG/ADEOS est un précurseur très important de IASI. Étant basé sur les mêmes techniques d’observations, ses mesures peuvent en effet être adaptées afin d’obtenir des spectres de type IASI mesurés en conditions réelles, indispensables à une validation précise des développements. Cette application sera exposée dans le chapitre 6 de cette thèse.

Chapitre 4

Études de sensibilité

Les spectres IR présentent une forte signature spectrale d'absorption et d'émission de l'ozone autour de 1040 cm^{-1} (chapitre 2). *Clerboux et al.* [1998] ont réalisé un ensemble de simulations utilisant les caractéristiques des instruments IMG et IASI afin de déterminer la sensibilité des spectres IR mesurés à des changements de concentration d'O₃, de CO et de CH₄, ainsi que leur sensibilité au profil de température et aux caractéristiques instrumentales.

Une sélection des canaux spectraux correspondant à de fortes signatures d'absorption des espèces étudiées (supérieure au niveau de bruit) mais minimisant les interférences avec les autres constituants absorbant dans la même région spectrale a été réalisée afin d'isoler l'information utile dans la bande spectrale considérée. Les intervalles de *Clerboux et al.* [1998] sont spécifiés pour la résolution IMG. Le même exercice a ici été réalisé pour la restitution de l'O₃ à partir des spectres IASI. Les canaux conservés sont indiqués dans le tableau 4.1. Notons que la contribution des aérosols n'a pas été prise en compte.

La forte signature observée ne nous permet cependant pas d'affirmer la capacité de l'instrument à observer les quantités désirées. Pour l'ozone, la difficulté des observations de quantités troposphériques depuis l'espace provient en particulier de la présence de la couche d'ozone stratosphérique, qui représente 90 % de la quantité totale. Il est donc nécessaire de vérifier la sensibilité de l'instrument à l'ozone dans les différentes couches de l'atmosphère ainsi que notre capacité à restituer l'information.

Les différentes études, menées en complément aux premières études de *Clerboux et al.* [1998] afin de déterminer l'information sur la distribution verticale d'O₃ contenue dans les mesures de type IASI, sont présentées. La sensibilité de l'instrument est dans un premier temps explorée en évaluant les fonctions de poids ou Jacobiens associés aux spectres. Le nombre d'informations indépendantes mesurées et la résolution verticale qui pourra être atteinte sont ensuite étudiés en effectuant un diagnostic plus précis du contenu en information.

4.1 Étude des fonctions de poids IASI

La sensibilité des spectres mesurés à la variable observée est donnée par les fonctions de poids ou Jacobiens \mathbf{K} du modèle direct (*cf.* paragraphe 2.2.1) :

$$\mathbf{K} = \frac{\partial \mathbf{y}}{\partial \mathbf{x}} \sim \frac{\Delta \mathbf{y}}{\Delta \mathbf{x}} \quad (4.1)$$

TAB. 4.1 – Canaux sélectionnés pour l'inversion de l'ozone.

	Intervalle spectral (cm ⁻¹)	Canaux IASI	Nombre de canaux
1	1001.50 - 1003.00	1427 - 1433	7
2	1005.00 - 1009.25	1441 - 1458	18
3	1011.50 - 1013.75	1467 - 1476	10
4	1015.25 - 1017.00	1482 - 1489	8
5	1018.50 - 1027.75	1495 - 1532	38
6	1033.75 - 1035.00	1556 - 1561	6
7	1035.75 - 1037.25	1564 - 1570	7
8	1037.75 - 1039.25	1572 - 1578	7
9	1039.75 - 1040.75	1580 - 1584	5
10	1041.75 - 1042.00	1588 - 1589	2
11	1043.75 - 1044.50	1596 - 1599	4
12	1045.50 - 1046.25	1603 - 1606	4
13	1047.50 - 1048.00	1611 - 1613	3
14	1049.75 - 1050.00	1620 - 1621	2
15	1052.50 - 1053.50	1631 - 1635	5
16	1054.25 - 1055.00	1638 - 1641	4
17	1056.25 - 1057.00	1646 - 1649	4
18	1057.50 - 1058.50	1651 - 1655	5
19	1061.00 - 1061.75	1665 - 1668	4
20	1063.25 - 1064.25	1674 - 1678	5
Total			148

avec $\Delta \mathbf{x}$ une perturbation appliquée au profil vertical \mathbf{x} de la variable étudiée. Si la mesure \mathbf{y} est de dimension m (canaux sélectionnés) et \mathbf{x} est défini sur n niveaux verticaux, alors \mathbf{K} est une matrice de dimension $m \times n$. \mathbf{K} peut être calculé analytiquement par dérivation du modèle direct, ou numériquement en utilisant une méthode de perturbation.

Les spectres ont été simulés en utilisant le code de transfert radiatif LBLRTM décrit précédemment (section 2.1.5). *Clough et al.* [1995a] précisent que, pour LBLRTM, le calcul analytique ou par perturbation donnent des résultats identiques. C'est cette dernière méthode que nous avons utilisée pour calculer la matrice \mathbf{K} caractérisant l'observation de l'ozone. Le profil d'ozone en entrée du code est perturbé niveau par niveau, et les spectres calculés à partir de ces profils (spectres perturbés) sont ensuite comparés à un spectre de référence, calculé à partir du profil non perturbé.

Pour les études de sensibilité, nous avons utilisé les profils atmosphériques de l'atmosphère standard US 1976, avec une perturbation $\Delta \mathbf{x}/\mathbf{x}$ égale à 10%¹. La figure 4.1 représente les profils de concentration (densité moléculaire) et de rapport de mélange d'ozone (rapport de mélange = concentration / ρ_{air}) pour l'atmosphère US 1976. Le maximum de concentration d'ozone se situe autour de 22 km d'altitude, avec un facteur 10 environ entre les concentrations maximales dans la stratosphère et les concentrations troposphériques. Le maximum de rapport de mélange est atteint autour de 35 km d'altitude, avec un rapport beaucoup plus grand entre les valeurs maximales et les valeurs troposphériques (plus de 2 ordres de grandeur). Ces différences s'expliquent par le fait que le rapport de mélange

¹L'utilisation d'une perturbation plus importante, 100 % par exemple, donne des résultats similaires.

ne tient pas compte des conditions atmosphériques, de la pression en particulier qui augmente en se rapprochant de la surface. Pour cette raison, la concentration représente la quantité la plus directement liée au transfert radiatif [Clough *et al.*, 1995a]. L'utilisation de la représentation en rapport de mélange permet toutefois d'étudier la sensibilité au constituant seul. Il est donc intéressant d'étudier la sensibilité de l'instrument à ces deux quantités en calculant deux types de Jacobiens : le premier calculé en perturbant le profil de concentration d'ozone, et le second en perturbant son profil de rapport de mélange.

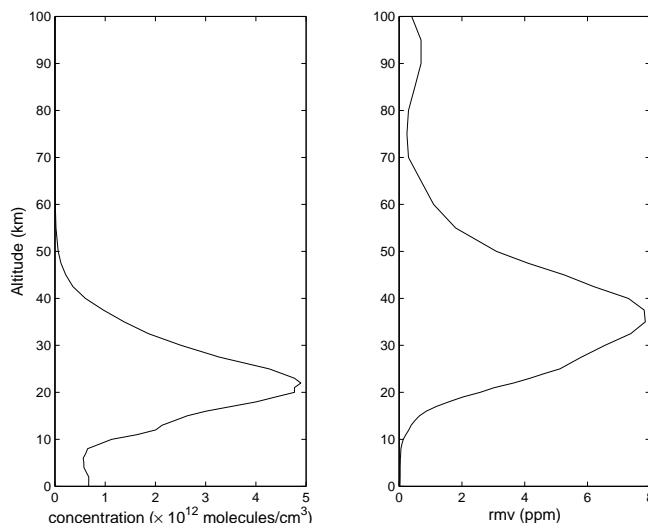


FIG. 4.1 – *Profils de concentration et de rapport de mélange d'ozone pour l'atmosphère standard US 1976 de l'AFGL.*

Les Jacobiens obtenus sont représentés sur la figure 4.2 : les figures en 3 dimensions représentent les Jacobiens associés à chaque canal spectral sélectionné pour l'O₃, et la figure du bas montre un exemple pour un canal donné. L'amplitude de **K** dépend de l'intensité des luminances aux canaux correspondants, c'est-à-dire de l'intensité de l'absorption et de l'émission. Cependant, leurs caractéristiques principales restent similaires pour tous les canaux sélectionnés. La sensibilité atteint un maximum dans la troposphère libre et diminue rapidement au-dessous de 2 km d'altitude et au-dessus de 15-20 km d'altitude. Les Jacobiens associés à la concentration sont plus étalés que ceux associés au rapport de mélange, la sensibilité reste importante au-dessus de 25 km d'altitude. Leur maximum est également plus élevé : autour de 8-12 km, alors qu'il se situe plutôt autour de 6-8 km pour les Jacobiens associés au rapport de mélange.

Le maximum de sensibilité dans la troposphère libre s'explique par l'élargissement collisionnel des raies spectrales qui augmente avec la pression. La diminution de la densité de l'air avec l'altitude entraîne une moins bonne sensibilité des spectres dans la stratosphère, même si le rapport de mélange de l'ozone y est maximum. La sensibilité reste cependant importante à des altitudes plus élevées si l'on considère la sensibilité du spectre à la concentration d'ozone car la densité de l'air est prise en compte ($\mathbf{K}_{\text{concentration}} = \mathbf{K}_{\text{rapport de mélange}} / \rho_{\text{air}}$).

À basse altitude, le manque de contraste thermique avec la surface réduit fortement la sensibilité des spectres mesurés au profil d'ozone dans les basses couches, effet qui est accentué par le recouvrement des raies lié à leur élargissement ainsi qu'à la résolution

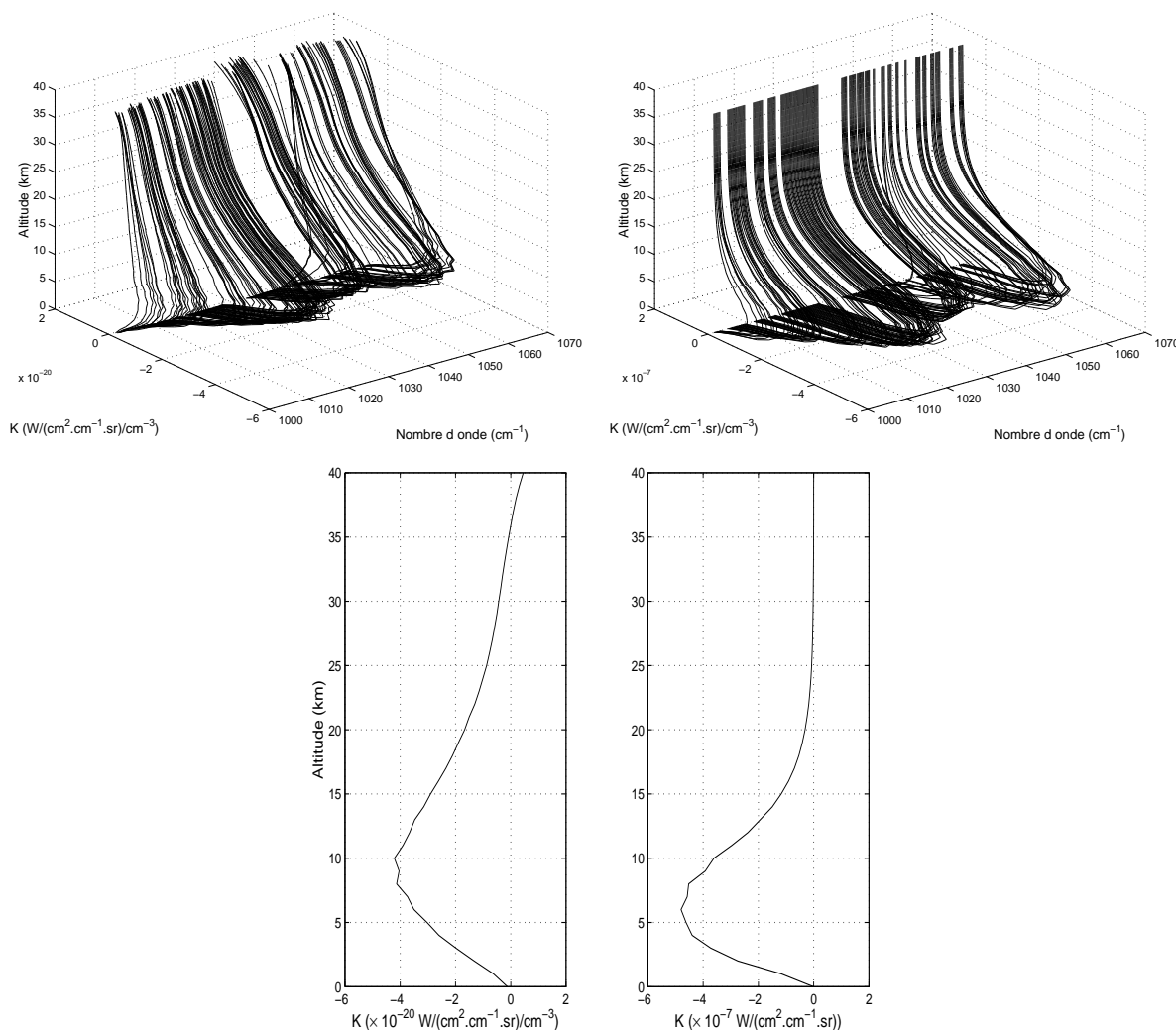


FIG. 4.2 – Fonctions de poids associées à l'atmosphère standard US 1976 pour les canaux spectraux sélectionnés pour l' O_3 , calculées à partir du profil de concentration d' O_3 (haut à gauche) et du profil de rapport de mélange d' O_3 (haut à droite). Les figures du bas représentent les fonctions de poids à 1020 cm^{-1} (correspondant au domaine spectral représenté sur les figures du haut).

limitée de l'instrument. La forme des raies est pour ces raisons mal résolue et ne permet pas, en particulier, d'accéder totalement à l'information contenue au niveau des ailes des raies, qui correspond à une signature des plus basses couches de l'atmosphère. Ce problème de faible sensibilité à la couche limite atmosphérique est un problème commun aux observations en visée au nadir dans l'infrarouge thermique. Dans le cas d'une mesure réelle, cette sensibilité est encore dégradée par le bruit radiométrique affectant les spectres.

L'étude des Jacobiens permet donc de vérifier que les spectres IASI contiennent effectivement de l'information sur les quantités d'ozone dans la troposphère ainsi que dans la stratosphère, et de vérifier par simulation la capacité de l'instrument à les mesurer. Elle ne renseigne cependant pas de manière précise sur la quantité d'information indépendante contenue dans les spectres ou sur la résolution verticale qui peut être atteinte. Pour cela, une étude plus précise doit être réalisée.

4.2 Évaluation de l'approximation linéaire

Comme mentionné dans le paragraphe 2.2.1, la caractérisation des observations (directes ou inversées) par l'approximation linéaire est valable pour des problèmes linéaires à modérément non-linéaires, linéarisés de manière appropriée.

Le degré de linéarité d'un problème peut être examiné en comparant le modèle direct complet $\mathbf{y} = \mathbf{F}(\mathbf{x}) + \boldsymbol{\varepsilon}$ au modèle direct linéarisé $\mathbf{y} = \mathbf{K}\mathbf{x} + \boldsymbol{\varepsilon}$, soit dans les limites de la covariance de l'erreur sur la solution, soit dans les limites de la variabilité *a priori*. Dans ce dernier cas, l'écart à la linéarité peut être évalué en calculant :

$$\delta\mathbf{y} = \mathbf{F}(\mathbf{x}) - \mathbf{F}(\mathbf{x}_a) - \mathbf{K}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) \quad (4.2)$$

avec \mathbf{x} de l'ordre de 1 sigma au-delà de \mathbf{x}_a . Ce calcul peut être réalisé de manière systématique en prenant $\mathbf{x} = \mathbf{x}_a \pm \mathbf{e}_i$ où \mathbf{e}_i représente une structure d'erreur de la matrice de covariance *a priori* \mathbf{S}_a , obtenue en utilisant la décomposition en valeurs propres de \mathbf{S}_a :

$$\mathbf{e}_i = \lambda_i^{1/2} \mathbf{l}_i \text{ avec } \mathbf{S}_a \mathbf{l}_i = \lambda_i \mathbf{l}_i \quad i = 1, \dots, n \quad (4.3)$$

avec λ_i et \mathbf{l}_i respectivement les valeurs propres et vecteurs propres de \mathbf{S}_a . Les profils \mathbf{x} correspondent donc au profil *a priori* \mathbf{x}_a perturbé par des valeurs représentatives de la variabilité de l'ozone autour de l'*a priori*.

L'importance de $\delta\mathbf{y}$ peut être évaluée en la comparant à la matrice de covariance de l'erreur sur la mesure \mathbf{S}_ε :

$$\mathbf{c}^2 = \delta\mathbf{y}^T \mathbf{S}_\varepsilon^{-1} \delta\mathbf{y} \quad (4.4)$$

Si l'effet de la non-linéarité est inférieur à l'effet de l'erreur sur la mesure ($\mathbf{c}^2 \leq 1$), alors le problème peut être considéré comme linéaire. En pratique, dès que des non-linéarités apparaissent, la valeur de \mathbf{c}^2 augmente considérablement, atteignant rapidement des valeurs de l'ordre de 10^5 ou 10^6 . Nous avons considéré que le problème reste modérément non-linéaire tant que $\mathbf{c}^2 < 10^3$.

L'étude est ici réalisée pour l'atmosphère standard US 1976 sur les canaux spectraux correspondant aux intervalles optimisés pour une inversion de l'ozone (tableau 4.1). Les mesures ont été simulées en utilisant le modèle de transfert radiatif haute résolution LBLRTM.

Les trois matrices qu'il est nécessaire de spécifier sont : la matrice de jacobiens \mathbf{K} , la matrice de covariance de l'erreur sur la mesure \mathbf{S}_ε et la matrice de covariance *a priori* \mathbf{S}_a .

\mathbf{K} a été calculée pour US 1976 lors des premières études de sensibilité des spectres, décrites précédemment, pour les profils verticaux de rapport de mélange et de concentration d'ozone.

La matrice \mathbf{S}_ε a été simulée en supposant un bruit blanc, non corrélé, d'écart type égal à $2.5 \cdot 10^{-8} \text{ W}/(\text{cm}^2 \text{cm}^{-1} \text{sr})$, valeur prévue pour le bruit radiométrique IASI dans la bande de l'ozone (figure 3.5). \mathbf{S}_ε est donc une matrice diagonale de dimension $m \times m$.

Le choix de \mathbf{S}_a est plus difficile et a un impact très important sur les résultats obtenus puisque cette matrice représente la variabilité autorisée autour de l'état *a priori* considéré pour la résolution du problème. Nous avons choisi de considérer une matrice représentative de ce que nous connaissons de la variabilité naturelle des profils d'O₃. Pour cela, les profils

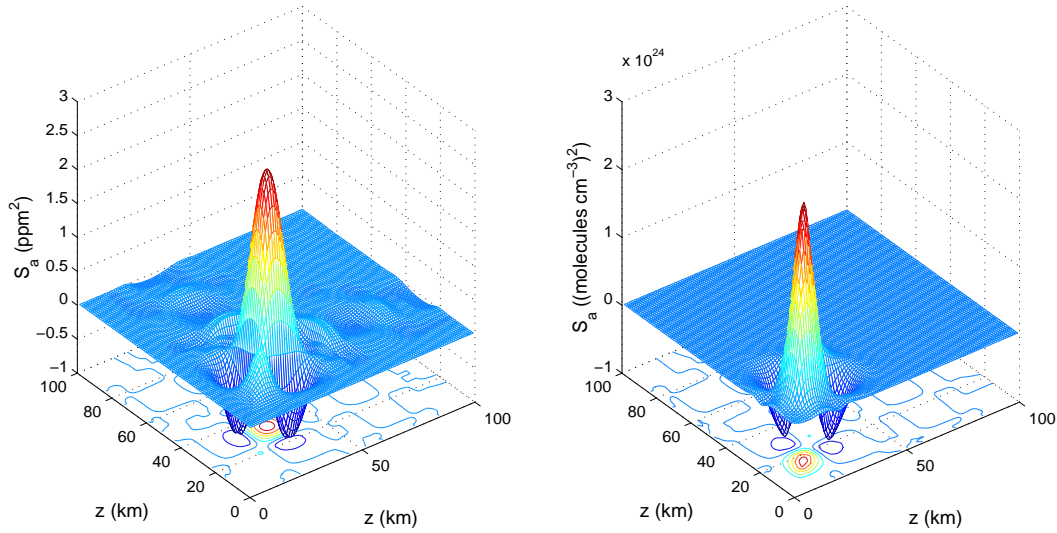


FIG. 4.3 – Matrices de covariance a priori utilisées pour le diagnostic : S_a rm MOZART/climatology (à gauche) et S_a cc MOZART/climatology (à droite). Voir le texte pour la description de ces matrices.

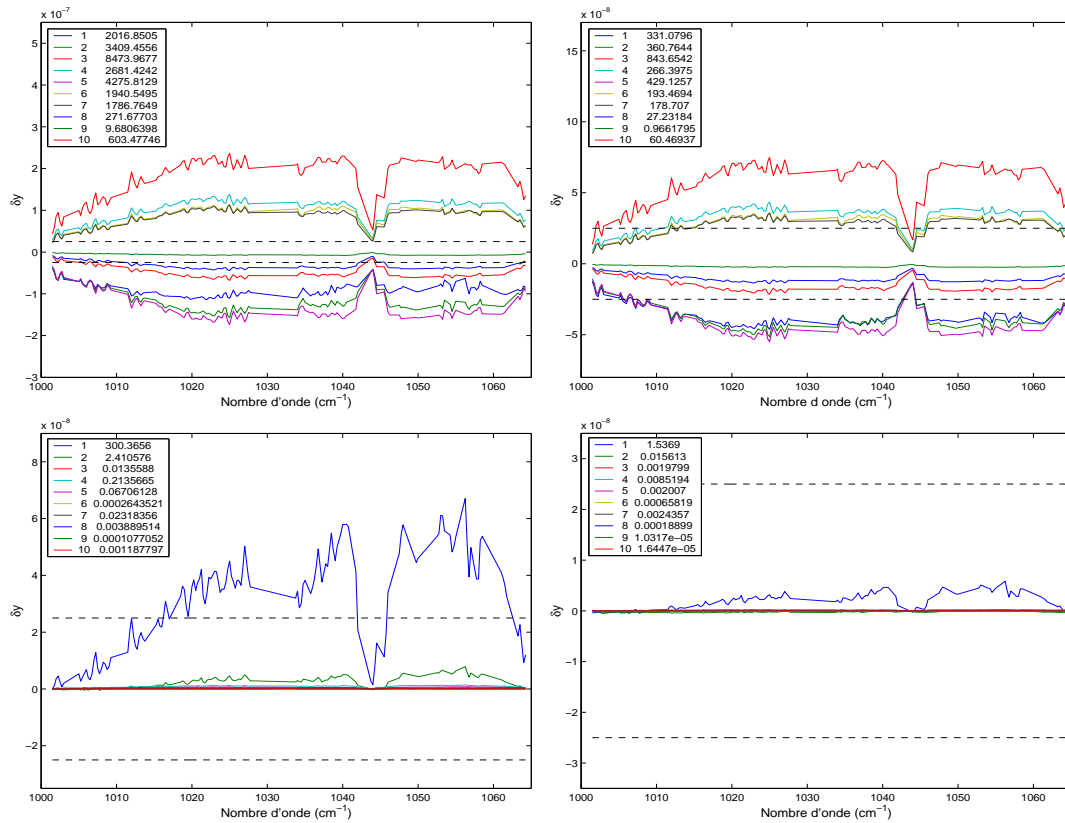


FIG. 4.4 – Degré de linéarité évalué pour S_a (à gauche) et pour S_a égal à $1/10^e$ de S_a (à droite), pour le rapport de mélange d’ozone (en haut) et la concentration d’ozone (en bas) : δy et critère c^2 associé. Le niveau de bruit prévu pour IASI ($2.5 \cdot 10^{-8} \text{ W/cm}^2 \text{ cm}^{-1} \text{ sr}$) est indiqué en traits pointillés noirs.

de rapport de mélange et de concentration issus du modèle de chimie-transport MOZART et raccordés aux climatologies UGAMP au-dessus de la tropopause ont été utilisés. La variabilité spatiale et temporelle de l'O₃ est représentée en conservant tous les profils du 1^{er} de chaque mois de l'année pour le calcul de \mathbf{S}_a . Une forte variation autour du profil *a priori* est donc permise.

Les matrices déduites, représentées sur la figure 4.3, sont les suivantes :

- matrice \mathbf{S}_a représentant la variabilité du profil de rapport de mélange d'ozone, appelée par la suite \mathbf{S}_a rm MOZART/climatologie ;
- matrice \mathbf{S}_a représentant la variabilité du profil de concentration d'ozone, appelée par la suite \mathbf{S}_a cc MOZART/climatologie.

Les structures d'erreur \mathbf{e}_i des deux matrices \mathbf{S}_a (rm et cc) représentent donc des modes de variabilité naturelle de l'ozone.

Les différences δy et les critères de non-linéarité c^2 associés sont représentés sur la figure 4.4 pour les 10 premières structures \mathbf{e}_i , appliquées aux profils de rapport de mélange et de concentration d'ozone pour l'atmosphère standard US 1976. Le même exercice a été réalisé en considérant une variabilité plus faible, égale à 1/10^e de \mathbf{S}_a , qui implique une variation plus faible autour de l'état *a priori*.

L'étude met en évidence le caractère fortement non-linéaire du problème direct par rapport au profil de rapport de mélange d'O₃, avec un critère c^2 supérieur à 10³ pour quasiment tous les modes considérés. Pour une variabilité égale à 1/10^e de \mathbf{S}_a rm MOZART/climatologie, c^2 diminue très nettement, d'un facteur 10 environ, et devient de l'ordre de 10² (ou <10²) pour tous les modes. Plus la variabilité considérée est faible et plus nous nous rapprochons du cas linéaire. La linéarisation devra donc être réalisée avec beaucoup d'attention, en considérant une variabilité *a priori* \mathbf{S}_a rm suffisamment faible.

La linéarité par rapport au profil de concentration est moins difficile à obtenir. Seuls deux modes ne sont pas parfaitement linéaires ($c^2 > 1$) pour une variabilité égale à \mathbf{S}_a cc MOZART/climatologie. Ceci vérifie le fait que le profil de concentration d'ozone est plus directement lié au transfert radiatif que son rapport de mélange.

Dans les deux cas considérés, la linéarisation est valable dans le voisinage de l'état réel. Le problème direct peut donc être considéré comme modérément non-linéaire. Ainsi, les théories de l'information et de l'erreur de *Rodgers* [2000] peuvent être utilisées mais une inversion linéaire ne donnera pas de résultats satisfaisants. Si le problème n'est pas excessivement non-linéaire, une solution optimale peut être estimée numériquement grâce à une méthode itérative. À chaque itération, le problème est linéarisé au voisinage de la solution de l'itération précédente, l'état de départ du processus itératif, ou "first guess", pouvant être égal à l'information *a priori*.

4.3 Contenu en information de la mesure

Afin de mieux évaluer les capacités du système d'observation IASI, nous avons étudié le nombre de quantités indépendantes qui peuvent être mesurées et estimé le nombre de degrés de liberté. Après une rapide description théorique des méthodes utilisées, basées sur *Rodgers* [1990, 2000], l'application à l'exemple précédent de l'atmosphère standard US 1976 avec un bruit blanc aléatoire de l'ordre de 2.5 10⁻⁸ W/cm²cm⁻¹sr et les matrices \mathbf{S}_a rm et cc MOZART/climatologies représentant la variabilité de l'O₃ est présentée.

4.3.1 Quantité d'informations indépendantes

Cas d'une mesure non-bruitée

En l'absence d'erreur sur la mesure, le nombre d'informations indépendantes contenues dans la mesure est égal au rang p de la matrice \mathbf{K} , c'est-à-dire au nombre de lignes (ou colonnes) linéairement indépendantes de la matrice des fonctions de poids. Il peut être estimé en trouvant une base, ou un système de coordonnées, pour l'espace des états (ou espace des sorties \mathbf{x}). Une décomposition en vecteurs singuliers (SVD, de l'anglais "Singular Vector Decomposition") est pour cela utilisée, en exprimant \mathbf{K} de la manière suivante :

$$\mathbf{K} = \mathbf{U}\mathbf{\Lambda}\mathbf{V}^T \quad (4.5)$$

avec \mathbf{U} ($m \times p$) et \mathbf{V} ($n \times p$) les matrices des vecteurs singuliers et $\mathbf{\Lambda}$ ($p \times p$) la matrice diagonale des valeurs singulières non-nulles. Les p colonnes de \mathbf{V} forment une base orthogonale pour l'espace des lignes de \mathbf{K} , espace des états, et les colonnes de \mathbf{U} forment la base correspondante dans l'espace des mesures. Cette décomposition permet de mettre en évidence les différents modes de variation des spectres (vecteurs singuliers de \mathbf{K}) avec la sensibilité associée (valeurs singulières).

Les résultats de la SVD de \mathbf{K} dans le cas de l'atmosphère US 1976 (estimé dans la première partie) sont représentés dans la figure 4.5. Le mode de variation le plus important est celui correspondant à la valeur propre la plus élevée, et donc à la sensibilité la plus importante. La forme de ce mode est proche de la forme générale des Jacobiens, décrite dans la première partie de ce chapitre : le maximum de sensibilité est atteint dans la troposphère libre (autour de 6-8 km pour un profil de rapport de mélange, et autour de 8-10 km pour un profil de concentration), et la sensibilité diminue fortement dans les premières couches de l'atmosphère et dans la stratosphère.

Le 2^{ème} mode représente une variabilité 25 fois plus faible que le 1^{er} pour un profil de rapport de mélange, avec deux pics de sensibilité légèrement décalés vers le haut et vers le bas par rapport au mode principal. La sensibilité aux modes suivants devient extrêmement faible : elle est 100 fois plus faible que la sensibilité au 1^{er} mode dès le 3^{ème} mode, 500 fois plus faible pour le 4^{ème}.

Pour un profil de concentration, le 2^{ème} mode a un pic plus marqué dans la haute troposphère et la basse stratosphère (pic autour de 11 km, altitude de la tropopause), avec une sensibilité environ 17 fois plus faible que le 1^{er} mode. Le 3^{ème} mode a un pic plus bas dans la troposphère (environ 5 km d'altitude), avec une sensibilité environ 25 fois plus faible que le 1^{er} mode. Les modes suivants ont une sensibilité 50 à 100 fois plus faible que le 1^{er} mode.

Cette analyse confirme donc les considérations de l'analyse directe des Jacobiens en mettant en évidence le maximum de sensibilité dans la troposphère libre. D'après cette étude, un peu plus d'une information indépendante utile pour l'inversion de l'ozone (sensibilité importante) est contenue dans les spectres. Les spectres semblent également plus sensibles à la concentration.

Rang effectif du problème

Si l'on considère une erreur sur la mesure, certaines informations de \mathbf{K} peuvent devenir inutilisables et la quantité d'informations indépendantes peut devenir inférieure à

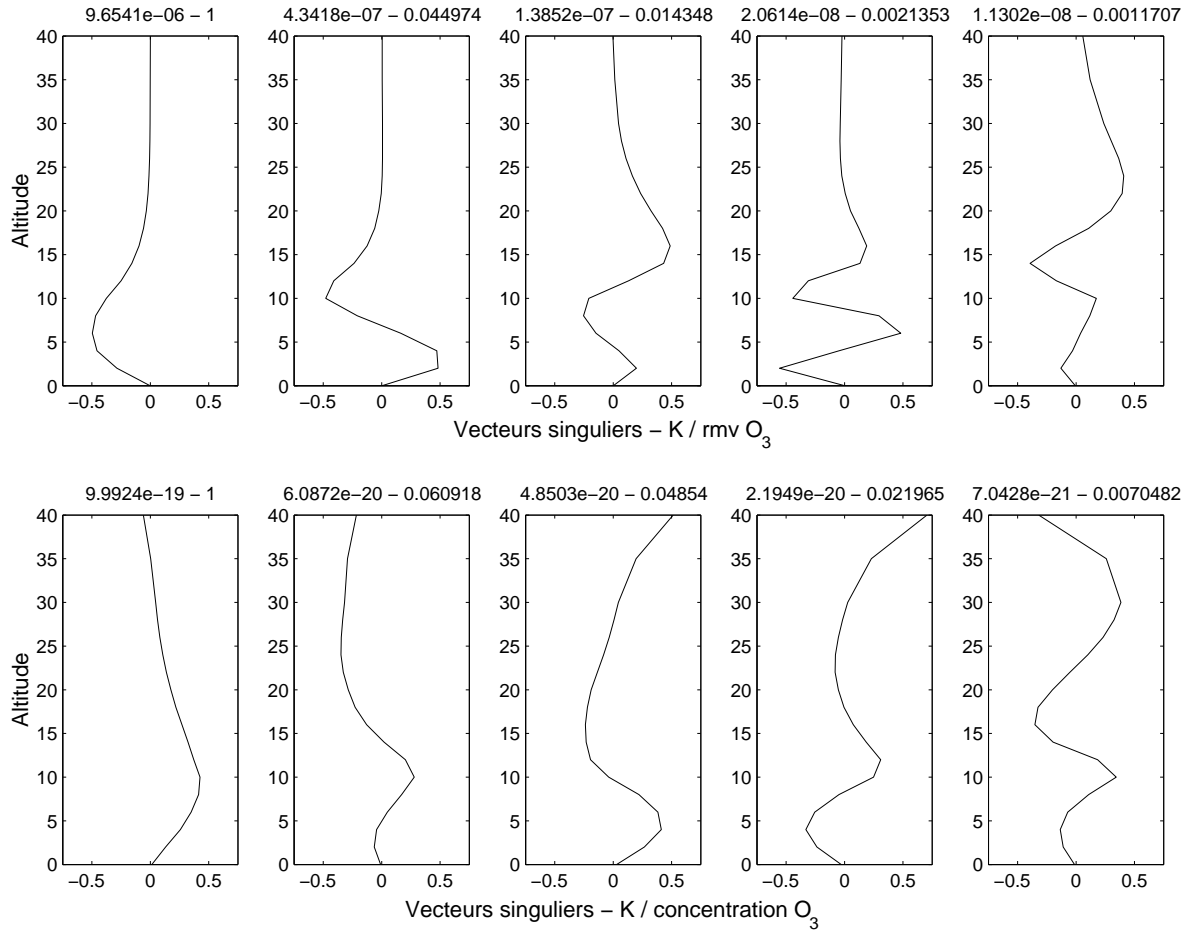


FIG. 4.5 – Les 5 premiers vecteurs singuliers résultant de la décomposition de la matrice \mathbf{K} dans le cas de l'atmosphère US 1976, pour \mathbf{K} calculé pour le rapport de mélange d' O_3 (figure du haut) et pour la concentration d' O_3 (figure du bas). Les valeurs singulières sont indiquées au-dessus de chaque figure, ainsi que leur importance relative par rapport à la 1^{ère} structure (correspondant au maximum de sensibilité).

p. Le nombre d'informations indépendantes peut être considéré comme le rang effectif du problème.

Afin de déterminer ce rang effectif, la variabilité naturelle de la quantité mesurée est comparée à la covariance de l'erreur sur la mesure. Une composante dont la variabilité est inférieure à l'erreur de mesure est non-mesurable. Les matrices de covariance présentant des éléments hors diagonaux non nuls, la comparaison n'est pas immédiate. Une manière de contourner ce problème est de transformer les variables afin de diagonaliser les matrices. Une méthode consiste à transformer les espaces des états et des mesures en utilisant les expressions suivantes (équivalentes aux variables \mathbf{x} et \mathbf{y} centrées réduites) :

$$\tilde{\mathbf{x}} = \mathbf{S}_a^{-\frac{1}{2}}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) \quad \text{et} \quad \tilde{\mathbf{y}} = \mathbf{S}_\varepsilon^{-\frac{1}{2}}\mathbf{y} \quad (4.6)$$

Dans le cas d'un problème linéaire avec erreur sur la mesure, le modèle direct s'écrit

$\mathbf{y} = \mathbf{K}\mathbf{x} + \boldsymbol{\varepsilon}$. Après transformation, il devient :

$$\begin{aligned}\tilde{\mathbf{y}} &= \mathbf{S}_{\boldsymbol{\varepsilon}}^{-\frac{1}{2}} \mathbf{K} \mathbf{S}_{\mathbf{a}}^{-\frac{1}{2}} \tilde{\mathbf{x}} + \mathbf{S}_{\boldsymbol{\varepsilon}}^{-\frac{1}{2}} \boldsymbol{\varepsilon} \\ &= \tilde{\mathbf{K}} \tilde{\mathbf{x}} + \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}\end{aligned}\quad (4.7)$$

et $\tilde{\mathbf{K}} = \mathbf{S}_{\boldsymbol{\varepsilon}}^{-\frac{1}{2}} \mathbf{K} \mathbf{S}_{\mathbf{a}}^{-\frac{1}{2}}$ correspond à la matrice de Jacobiens \mathbf{K} dans l'espace transformé (centré réduit).

Dans le système transformé, les variances de l'état $\tilde{\mathbf{x}}$ et de l'erreur sur la mesure $\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}$ sont des matrices identité plus faciles à manipuler. Afin de déterminer la quantité d'information indépendante, la covariance $\mathbf{S}_{\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}}$ de l'erreur $\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}$ sera comparée à la covariance $\mathbf{S}_{\tilde{\mathbf{y}}}$ de $\tilde{\mathbf{y}}$, dont les expressions sont respectivement :

$$\begin{aligned}\mathbf{S}_{\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}} &= \mathcal{E}(\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}} \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^T) \\ &= \mathbf{S}_{\boldsymbol{\varepsilon}}^{-\frac{1}{2}} \mathcal{E}(\boldsymbol{\varepsilon} \boldsymbol{\varepsilon}^T) \mathbf{S}_{\boldsymbol{\varepsilon}}^{-\frac{1}{2}} \\ &= \mathbf{I}_m\end{aligned}\quad (4.8)$$

et

$$\begin{aligned}\mathbf{S}_{\tilde{\mathbf{y}}} &= \mathcal{E}(\tilde{\mathbf{y}} \tilde{\mathbf{y}}^T) \\ &= \mathcal{E}((\tilde{\mathbf{K}} \tilde{\mathbf{x}} + \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}})(\tilde{\mathbf{K}} \tilde{\mathbf{x}} + \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}})^T) \\ &= \tilde{\mathbf{K}} \tilde{\mathbf{K}}^T + \mathbf{I}_m\end{aligned}\quad (4.9)$$

où \mathcal{E} représente l'espérance mathématique et \mathbf{I}_m la matrice identité de dimension $m \times m$.

Dans le cas considéré, $\tilde{\mathbf{K}} \tilde{\mathbf{K}}^T$ n'est généralement pas diagonal. Une transformation supplémentaire est donc nécessaire. En utilisant la décomposition en valeurs singulières de $\tilde{\mathbf{K}}$

$$\tilde{\mathbf{K}} = \mathbf{U} \boldsymbol{\Lambda} \mathbf{V}^T, \quad (4.10)$$

on obtient :

$$\begin{aligned}\mathbf{y}' &= \mathbf{U}^T \tilde{\mathbf{y}} = \mathbf{U}^T \tilde{\mathbf{K}} \tilde{\mathbf{x}} + \mathbf{U}^T \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}} \\ &= \boldsymbol{\Lambda} \mathbf{V}^T \tilde{\mathbf{x}} + \boldsymbol{\varepsilon}' \\ &= \boldsymbol{\Lambda} \mathbf{x}' + \boldsymbol{\varepsilon}'\end{aligned}\quad (4.11)$$

Les matrices de covariance de \mathbf{x}' et $\boldsymbol{\varepsilon}'$ sont des matrices identité, donc celle de \mathbf{y}' est diagonale ($= \boldsymbol{\Lambda}^2 + \mathbf{I}_m$). Les éléments de \mathbf{y}' dont la variabilité est plus importante que le niveau de bruit sont ceux pour lesquels le carré des valeurs singulières de $\tilde{\mathbf{K}}$, λ_i^2 , est supérieur ou proche de 1. À l'inverse, les éléments pour lesquels $\lambda_i^2 \simeq 0$ ne contiennent aucune information utile.

Le rang effectif du problème, c'est-à-dire le nombre d'informations indépendantes qui peuvent être obtenues avec une précision meilleure que l'erreur sur la mesure, est égal au nombre de valeurs singulières de $\tilde{\mathbf{K}}$ supérieures ou proches de 1.

En considérant toujours le cas de l'atmosphère standard US 1976 avec un bruit blanc aléatoire de l'ordre de $2.5 \cdot 10^{-8} \text{ W/cm}^2 \text{cm}^{-1} \text{sr}$ et les matrices \mathbf{S}_a (rm et cc) représentant la variabilité de l'O₃, égale à $1/10^6$ de la matrice \mathbf{S}_a MOZART/climatologies (afin de se placer dans le cas linéaire par rapport au profil de concentration), les cinq premiers vecteurs et valeurs singuliers de $\tilde{\mathbf{K}}$ obtenus sont représentés sur la figure 4.6. Si l'on

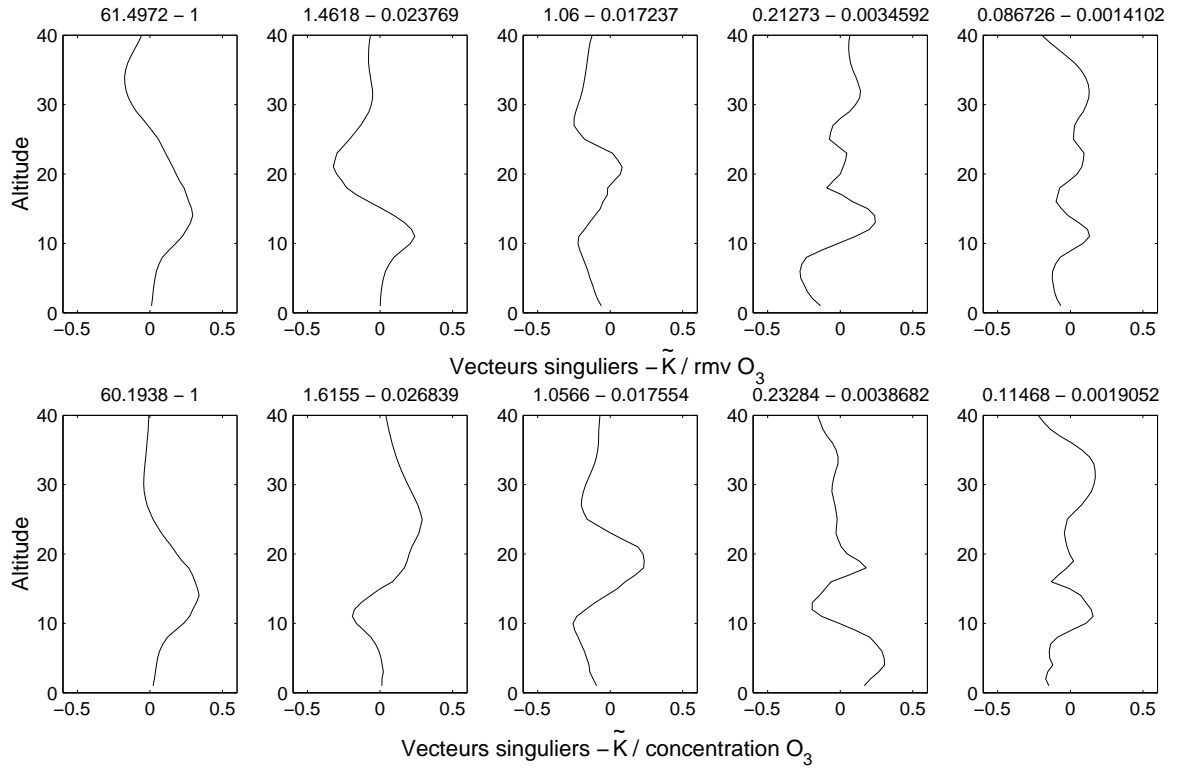


FIG. 4.6 – Les 5 premiers vecteurs singuliers résultant de la décomposition de la matrice $\tilde{\mathbf{K}}$ dans le cas de l’atmosphère US 1976, pour $\tilde{\mathbf{K}}$ calculé pour le rapport de mélange d’ O_3 (figure du haut) et pour la concentration d’ O_3 (figure du bas) en considérant la matrice de covariance a priori \mathbf{S}_a égale à $1/10^e$ de la matrice \mathbf{S}_a MOZART/climatologies. Les valeurs singulières sont indiquées au-dessus de chaque figure, ainsi que leur importance par rapport à la 1^{ère} structure (correspondant au maximum de sensibilité).

considère \mathbf{S}_a MOZART/climatologies, les vecteurs propres ont une forme identique mais les valeurs propres sont plus importantes (d’un facteur 3 environ).

Les vecteurs propres de $\tilde{\mathbf{K}}$ (représentant l’information utile pour l’observation de l’ O_3) présentent des pics à des altitudes plus élevées que les vecteurs propres de \mathbf{K} . Les formes des premiers modes se retrouvent cependant. Les différences entre les vecteurs propres de \mathbf{K} et $\tilde{\mathbf{K}}$ s’expliquent par la prise en compte de la variabilité de l’ O_3 par le biais de \mathbf{S}_a . Les couches d’altitude de fortes variabilité se situent en effet dans la basse stratosphère et la haute troposphère.

Les valeurs propres de $\tilde{\mathbf{K}}$ obtenues pour l’inversion du profil de rapport de mélange et du profil de concentration d’ozone sont du même ordre de grandeur. Elles permettent d’estimer le nombre d’informations indépendantes à 3 environ (3 valeurs propres supérieures ou proches de l’unité).

4.3.2 Degrés de liberté du signal et résolution verticale

Le nombre d’informations indépendantes peut être estimé de manière plus formelle en calculant le nombre de degrés de liberté associés au signal. Ce calcul dépend de la méthode inverse choisie car il fait intervenir la matrice de gain \mathbf{G} . Le problème pouvant

être considéré comme étant modérément non-linéaire, nous allons ici nous placer dans le cas linéaire Gaussien traité par *Rodgers* [1990, 2000], où l'état le plus probable est celui qui minimise

$$\chi^2 = (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)^T \mathbf{S}_a (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \boldsymbol{\varepsilon}^T \mathbf{S}_\varepsilon^{-1} \boldsymbol{\varepsilon} \quad (4.12)$$

avec $\boldsymbol{\varepsilon} = \mathbf{y} - \mathbf{K} \mathbf{x}$. Le minimum se trouve à

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{x}} - \mathbf{x}_a &= \mathbf{G}(\mathbf{y} - \mathbf{K} \mathbf{x}_a) \\ &= \mathbf{G}(\mathbf{K}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)\boldsymbol{\varepsilon}) \end{aligned} \quad (4.13)$$

avec

$$\mathbf{G} = \mathbf{S}_a \mathbf{K}^T (\mathbf{K} \mathbf{S}_a \mathbf{K}^T + \mathbf{S}_\varepsilon)^{-1} \quad (4.14)$$

Nombre de degrés de liberté du signal

Au minimum, χ^2 est égal au nombre total de degrés de liberté, c'est-à-dire au nombre de mesures m , et peut être divisé en deux parties :

- Le nombre de degrés de liberté du signal $d_s = \mathcal{E}((\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)^T \mathbf{S}_a (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a))$, la partie de χ^2 attribuée au signal qui mesure donc l'information.
- Le nombre de degrés de liberté du bruit $d_n = \mathcal{E}(\boldsymbol{\varepsilon}^T \mathbf{S}_\varepsilon^{-1} \boldsymbol{\varepsilon})$, la partie de χ^2 attribuée à l'erreur sur la mesure.

Nous nous intéressons ici à l'estimation de d_s . Sans entrer dans les détails du développement (pour la démonstration complète, voir *Rodgers* [2000]), d_s peut être exprimé en fonction de $\boldsymbol{\Lambda}$, la matrice diagonale des valeurs singulières (λ_i) de \mathbf{K} , et de \mathbf{I}_m , la matrice identité (de dimension $m \times m$) :

$$\begin{aligned} d_s &= \text{tr}(\boldsymbol{\Lambda}^2 (\boldsymbol{\Lambda}^2 + \mathbf{I}_m)^{-1}) \\ &= \sum_{i=1}^m \frac{\lambda_i^2}{1 + \lambda_i^2} \end{aligned} \quad (4.15)$$

Pour l'exemple étudié (atmosphère standard US 1976, bruit blanc aléatoire $\sim 2.5 \cdot 10^{-8}$ W/cm²cm⁻¹sr, \mathbf{S}_a rm et cc MOZART/climatologies), les valeurs obtenues sont les suivantes :

- Inversion d'un profil de rapport de mélange d'O₃ avec \mathbf{S}_a rm MOZART/climatologies : $d_s \simeq 3.26$;
- Inversion d'un profil de rapport de mélange d'O₃ avec $\mathbf{S}_a = 1/10 \mathbf{S}_a$ rm MOZART/climatologies : $d_s \simeq 2.26$;
- Inversion d'un profil de concentration d'O₃ avec \mathbf{S}_a cc MOZART/climatologies : $d_s \simeq 3.35$;
- Inversion d'un profil de concentration d'O₃ avec $\mathbf{S}_a = 1/10 \mathbf{S}_a$ cc MOZART/climatologies : $d_s \simeq 2.31$;

Une variabilité *a priori* assez grande (on a cherché à la diminuer en passant de \mathbf{S}_a à $1/10^e$ de \mathbf{S}_a) permet d'augmenter le nombre de degrés de liberté. Il faut cependant préciser qu'augmenter \mathbf{S}_a va également ajouter de l'incertitude à l'inversion réalisée.

Globalement, environ 2 à 3 degrés de liberté peuvent être observés pour la restitution du rapport de mélange ou de la concentration d'O₃.

Résolution verticale

Les noyaux caractérisant l'inversion représentent la sensibilité des variables inversées aux variables réelles (matrice \mathbf{A} , paragraphe 2.2.1), donc la sensibilité du système d'observation complet (instrument et algorithme d'inversion) aux variables étudiées :

$$\mathbf{A} = \mathbf{G} \mathbf{K} = \frac{\partial \hat{\mathbf{x}}}{\partial \mathbf{x}} \quad (4.16)$$

soit dans le cas Gaussien linéaire de *Rodgers* [2000] :

$$\mathbf{A} = (\mathbf{S}_a \mathbf{K}^T (\mathbf{K} \mathbf{S}_a \mathbf{K}^T + \mathbf{S}_\varepsilon)^{-1}) \mathbf{K} \quad (4.17)$$

Ici, chaque profil représente la sensibilité de la quantité d' O_3 à un niveau donné par rapport au profil réel d' O_3 . Le cas idéal est d'obtenir une sensibilité maximale de la quantité inversée (égale à +1) au niveau d'inversion (avec des noyaux de type Dirac, ou une matrice \mathbf{A} identité).

En pratique, les niveaux voisins du niveau d'inversion ont généralement un impact sur le niveau inversé et les noyaux sont plutôt des fonctions présentant un pic plus ou moins étalé autour du niveau considéré. Une information sur la résolution verticale qui peut être atteinte est fournie par la forme de ces noyaux, par leur largeur à mi-hauteur en particulier.

La figure 4.7 représente les noyaux calculés pour l'exemple précédemment discuté (atmosphère standard US 1976, bruit blanc aléatoire $\sim 2.5 \cdot 10^{-8} \text{ W/cm}^2\text{cm}^{-1}\text{sr}$, \mathbf{S}_a rm et cc = 1/10 \mathbf{S}_a MOZART/climatologies). Les noyaux obtenus sont des fonctions présentant un pic très étalé, dont le maximum ne correspond pas toujours au niveau inversé.

Dans le cas de l'inversion d'un profil de rapport de mélange d' O_3 , de forts pics de sensibilité, atteignant des valeurs supérieures à 2, sont obtenus autour de 3 km d'altitude. De la même façon, de forts pics négatifs sont observés autour de 4 et autour de 11 km. Ces fortes sensibilités ne se retrouvent pas si on se limite aux noyaux correspondants aux 15 premiers niveaux d'inversion (figures du bas). Les pics de fortes valeurs positives ou négatives correspondent donc à des niveaux d'inversion dans la stratosphère situés au-dessus de 25 km d'altitude. L'information contenue dans les mesures sur le rapport de mélange dans la stratosphère ne semble donc pas suffisante pour permettre l'inversion du rapport de mélange au-dessus d'environ 25 km d'altitude : l'inversion conduit en pratique à des phénomènes de compensation entre la stratosphère et la troposphère.

Un zoom sur les premiers niveaux d'inversion permet de mieux observer les noyaux caractéristiques de l'inversion du rapport de mélange dans la troposphère et la basse stratosphère. Les fonctions obtenues sont très étalées et présentent un maximum entre environ 6 et 10 km d'altitude quel que soit le niveau d'inversion considéré. Leur largeur à mi-hauteur, représentative de la résolution verticale atteinte, est d'environ 10 km.

Dans le cas de l'inversion d'un profil de concentration d' O_3 , les pics de sensibilité correspondent à des niveaux d'inversion relativement proches dans la troposphère et dans la stratosphère. Le phénomène de compensation est moins marqué, le problème étant ici plus linéaire. 2 pics principaux se distinguent : le premier autour de 6–10 km d'altitude, dans la troposphère libre, le second autour de 15–20 km d'altitude, dans la basse stratosphère. La bonne sensibilité dans la stratosphère provient du fort rapport de mélange d' O_3 dans cette région, qui permet de compenser l'effet de la diminution de la densité de l'air. Comme nous l'avons déjà précisé lors de l'étude des Jacobiens \mathbf{K} , la sensibilité

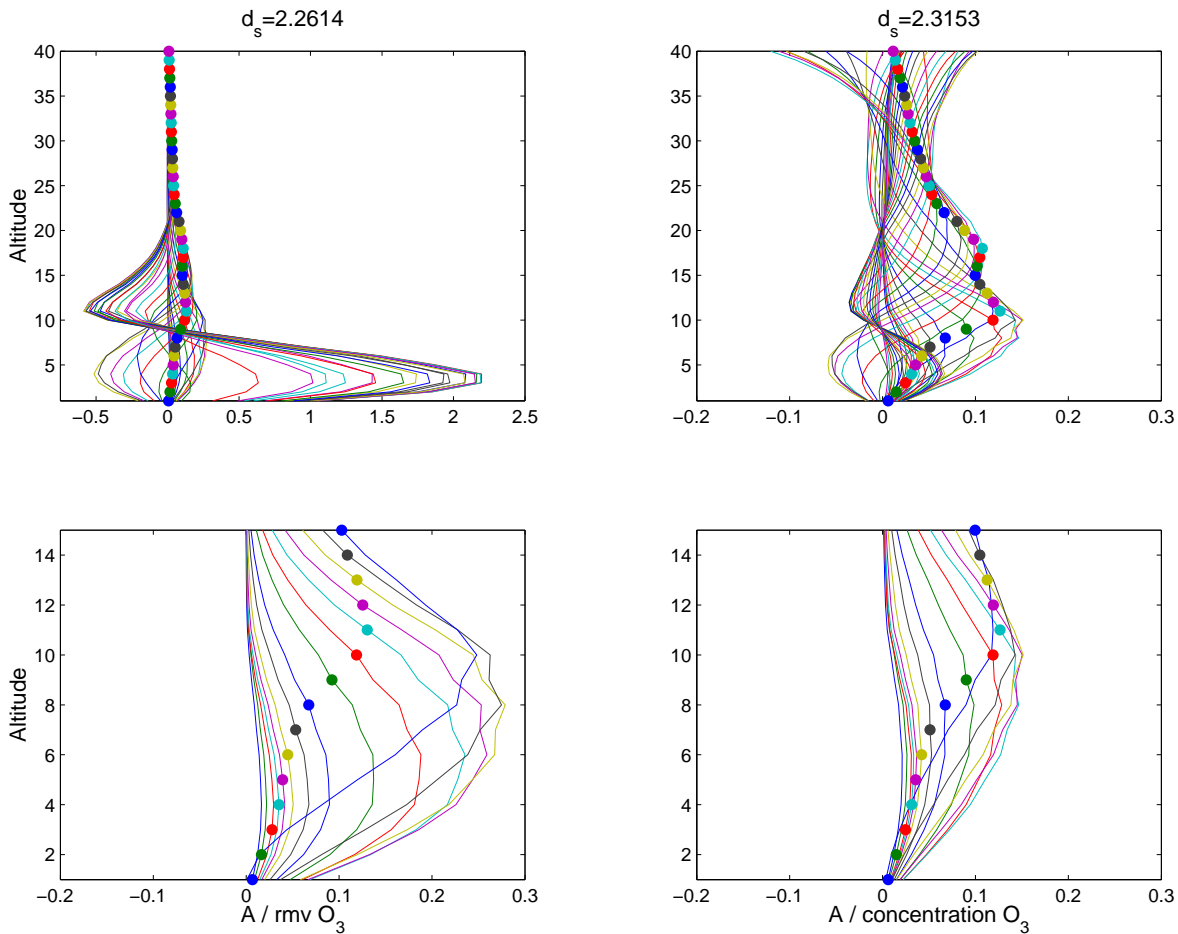


FIG. 4.7 – Noyaux obtenus pour l'inversion d'un profil de rapport de mélange d' O_3 (figures de gauche) et d'un profil de concentration d' O_3 (figures de droite), en utilisant les fonctions de poids simulées pour IASI à partir de l'atmosphère standard US 1976, un bruit blanc de $2.5 \cdot 10^{-8} W/(cm^2 cm^{-1} sr)$ (valeur prévue dans la bande de l' O_3), et la matrice de covariance a priori $S_a = 1/10 S_a \text{ MOZART/climatologies}$. Les points colorés indiquent les niveaux d'inversion correspondant à chacun des noyaux. Les figures du bas représentent les noyaux pour les 15 premiers niveaux d'inversion uniquement (zoom entre la surface et 15 km d'altitude).

plus importante dans la stratosphère lorsque l'on considère le profil de concentration que lorsque l'on considère le profil de rapport de mélange provient du fait que, dans ce cas, la diminution de la densité de l'air est prise en compte.

Même si les pics des noyaux semblent plus étroits dans le cas de la restitution du profil de concentration d' O_3 , une résolution verticale meilleure que 8 à 10 km ne pourra être atteinte. L'incertitude sur l'inversion d'un profil restera donc relativement importante.

4.4 Conclusions

L'étude a ici été réalisée sur un exemple particulier (l'atmosphère standard US 1976) mais permet une première estimation des capacités de IASI pour l'observation de l' O_3 .

Les mesures IASI sont très sensibles au contenu d' O_3 . Même si le maximum de sensibilité des spectres est atteint dans la troposphère libre, leur sensibilité à l'ozone stra-

tosphérique reste importante compte tenu de sa forte concentration dans cette région de l'atmosphère, permettant l'observation de la quantité totale d'O₃.

Nous avons vérifié que le problème peut être considéré comme modérément non-linéaire et peut donc être linéarisé afin d'effectuer l'analyse du contenu en information et, plus tard, de l'erreur de restitution.

L'information contenue dans les spectres, avec seulement 2 à 3 informations indépendantes et une résolution verticale comprise entre 8 et 10 km, ne semble pas suffisante pour permettre l'inversion d'un profil d'ozone fiable. Il nous a donc semblé plus adapté de restituer des colonnes intégrées d'ozone.

Nous avons ici choisi d'inverser une colonne totale d'ozone ainsi que plusieurs colonnes partielles représentatives des basses couches : trois colonnes partielles intégrées entre la surface et 6 km, 12 km et 16 km, ainsi qu'une colonne troposphérique. La colonne troposphérique est plus délicate à définir car l'altitude de la tropopause associée est difficile à déterminer. Aussi, son inversion ne sera pas réalisée en mode opérationnel mais pour une exploitation scientifique des résultats.

Chapitre 5

Inversion de l’ozone

Dans le cadre de la mission IASI, un algorithme d’inversion des constituants traces de l’atmosphère est en cours de développement au Service d’Aéronomie. L’algorithme d’inversion de l’ozone, du monoxyde de carbone et du méthane sera opérationnel lors de la mission IASI et est actuellement implémenté à EUMETSAT pour une intégration au segment-sol de l’EPS [Turquety *et al.*, 2003].

La structure générale de l’algorithme opérationnel IASI est résumée sur le schéma de la figure 5.1. Il se décompose en trois grandes parties :

1. La première phase consiste à isoler l’information mesurée (de niveau 1 ou 2) qui sera prise en entrée du module d’inversion ;
2. L’inversion est ensuite réalisée par un module basé sur les techniques des réseaux de neurones (RN) ;
3. Une analyse complète des produits de sortie (concentrations de gaz traces et luminances de test) est ensuite réalisée afin de leur associer une estimation de l’erreur d’inversion et le noyau caractérisant l’inversion. Des paramètres auxiliaires sont pour cela utilisés.
4. Une quatrième étape du traitement consisterait à coupler les concentrations de gaz trace inversées à des profils verticaux climatologiques complets, issus d’une classification, pour obtenir des profils de niveau 3 forcés par les mesures. Ces profils permettraient d’avoir un bon profil *a priori* pour une inversion plus précise en utilisant une méthode d’ajustement (classique) pour les cas plus difficiles à traiter par le RN. Cette dernière étape n’est pas encore bien définie et ne sera pas décrite ici.

Les techniques des réseaux de neurones ont été choisies pour l’inversion car ils permettent la modélisation de fonctions de transfert non-linéaires extrêmement complexes avec un grand nombre de paramètres en entrée [Thiria *et al.*, 1993]. D’autre part, les RN présentent de nombreuses propriétés nécessaires au traitement de mesures spatiales : ils sont adaptables, donc capables de prendre en compte de nouvelles variables relativement facilement, et ils sont très efficaces en phase opérationnelle.

L’algorithme d’inversion de l’ozone, développé au cours de cette thèse, est décrit dans ce chapitre. Dans un premier temps, les différentes parties de l’algorithme ainsi que les principales phases du développement sont exposées. L’analyse de l’erreur et la caractérisation de l’inversion sont ensuite présentées.

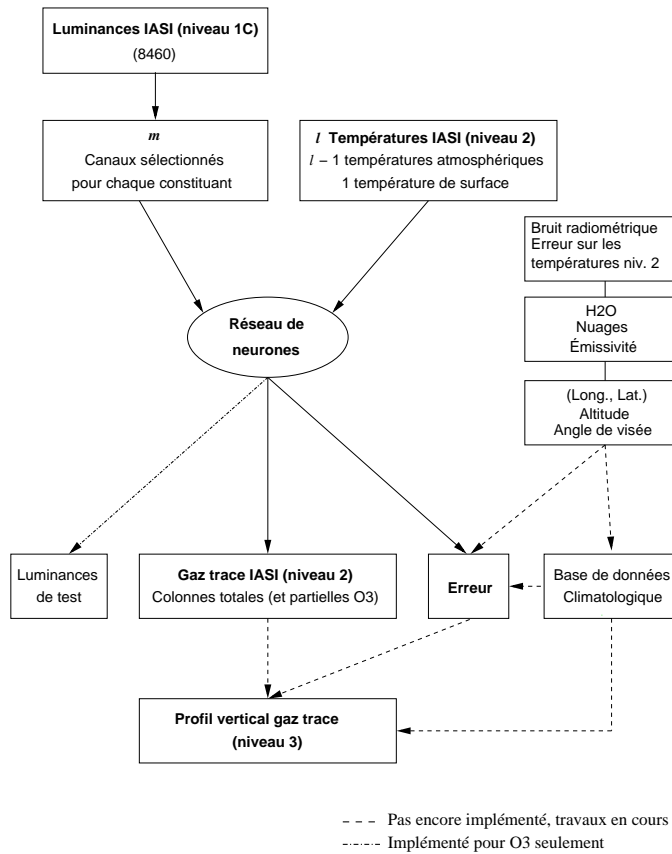


FIG. 5.1 – Schéma de l'algorithme opérationnel d'inversion des gaz traces (O_3 , CH_4 et CO) pour la mission IASI.

5.1 Paramètres d'entrée

Les entrées du module d'inversion comprennent les luminances correspondant aux canaux sélectionnés pour l'ozone (tableau 4.1), la température de surface et le profil vertical de température sur plusieurs niveaux de pression sélectionnés.

Le nombre total de canaux correspondant à une signature de l'ozone n'étant pas excessif (148 canaux), nous avons ici choisi de conserver tous les canaux car la redondance d'information permet d'augmenter le rapport signal/bruit.

Les niveaux de pression sur lesquels le profil vertical de température est entré sont sélectionnés parmi les niveaux de pression RTIASI [Matricardi and Saunders, 1999] sur lesquels la température sera inversée de manière opérationnelle au cours de la mission IASI. Ils sont indiqués sur la figure 5.2.

Afin de réduire l'impact des paramètres de surface (de l'émissivité de surface en particulier), des luminances différentielles sont utilisées. Elles correspondent aux luminances mesurées soustraites aux luminances d'un corps gris à la température de surface associée au spectre et avec une émissivité moyenne estimée à partir des valeurs fournies par Wilber *et al.* [1999] (ligne de base des spectres) : $y(\nu) = L_\nu(0) - L_\nu$.

Une entrée se compose ainsi de m luminances différentielles de niveau 1C (vecteur mesure \mathbf{y}) et de l températures de niveau 2 (estimations $\hat{\mathbf{b}}$ des paramètres du problème direct non-inversés \mathbf{b}), parmi lesquelles $l-1$ valeurs correspondent au profil vertical de

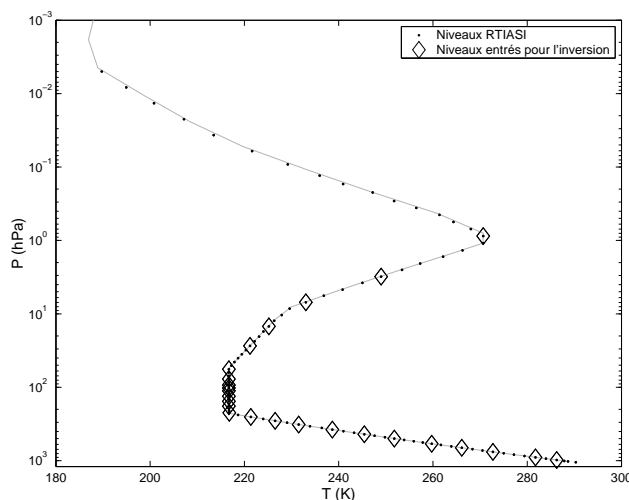


FIG. 5.2 – Niveaux de pression RTIASI sur lesquels le profil de température (atmosphère standard US 1976 ici) sera restitué de manière opérationnelle au cours de la mission IASI (points). Les losanges indiquent les $(l - 1)$ niveaux de pression sélectionnés pour l'inversion de l' O_3 (978.9817, 899.6864, 759.1557, 667.7082, 587.6382, 499.5392, 436.9500, 377.0533, 321.4999, 286.6001, 253.7100, 222.9400, 180.6731, 155.4281, 132.4924, 111.5983, 102.0500, 93.2342, 77.2013, 56.7300, 27.2600, 14.8100, 6.9500, 3.1095, 0.8722 hPa).

température et 1 à la température de surface.

Certains paramètres **b**, qui ne sont pas utilisés pour l'inversion, sont nécessaires pour l'évaluation de l'erreur (comme le montre la figure 5.1) et pourraient être ajoutés en entrée dans des versions ultérieures de l'algorithme d'inversion. Une information supplémentaire (utile pour le calcul d'erreur) est fournie par l'émissivité, la couverture nuageuse (déduite de l'imageur IASI couplé à AVHRR), la quantité de vapeur d'eau et des paramètres géographiques tels que l'altitude (ou la pression) de la surface au point de mesure, la position géographique du point de mesure (longitude, latitude) et l'angle de visée. Ces paramètres pourraient également être utilisés afin de sélectionner, dans la base de données climatologique, un profil vertical associé aux inversions (cette partie reste à définir).

5.2 Paramètres de sortie

L'étude du contenu en information sur des simulations de spectres IASI (chapitre 4) a montré que l'inversion d'un profil complet de rapport de mélange d' O_3 n'est pas réalisable. Plusieurs informations indépendantes (sur la verticale) peuvent cependant être observées. Pour l'étude du bilan global de l' O_3 , il est important de restituer la colonne totale, plutôt représentative des quantités d' O_3 stratosphériques, ainsi que la colonne troposphérique.

Nous avons ici choisi d'inverser la colonne totale d' O_3 (CT) ainsi que des colonnes partielles intégrées entre la surface et :

- 6 km ($C6$) : colonne partielle se situant quasiment toujours dans la troposphère (d'après l'étude de l'altitude de la tropopause calculée à partir des profils de température ECMWF réalisée dans le chapitre 6) ;
- 12 km ($C12$) : approximation de la colonne troposphérique aux moyennes latitudes ;

– 16 km (C16) : approximation de la colonne troposphérique dans les tropiques.

Une colonne troposphérique, intégrée entre la surface et la tropopause, est également inversée mais son utilisation est rendue délicate par le manque d'information sur l'altitude exacte de la tropopause associée. En effet, même si cette altitude est fournie en entrée par le profil de température, des tests ont montré qu'elle ne peut pas être restituée avec une précision suffisante en sortie. Ce produit n'est pas intégré dans l'algorithme opérationnel, un algorithme spécifique à son inversion est développé en parallèle. En complément de ces colonnes d'O₃, deux luminances sont inversées pour vérifier la cohérence interne de l'inversion : la première pour le canal à 976.75 cm⁻¹, proche de la ligne de base, et la deuxième pour le canal à 1034.75 cm⁻¹, correspondant à une forte signature de l'O₃.

L'erreur d'inversion, estimée en utilisant la méthode décrite dans la section 5.5, est associée au produit final, ainsi qu'un profil vertical climatologique de rapport de mélange, issu d'une classification. Dans le futur, il est envisagé de coupler les colonnes inversées au profil vertical associé afin d'obtenir un profil de niveau 3 forcé par les mesures.

5.3 Description du module d'inversion

L'algorithme d'inversion a été développé en utilisant les techniques des réseaux de neurones (RN), qui permettent la modélisation statistique de la fonction de transfert \mathbf{R} (cf. équation 2.19) en utilisant une approche Bayésienne proche des méthodes plus classiques (exposé dans le paragraphe 2.2.2).

Dans notre étude, l'équation du problème inverse (équation 2.19) peut s'écrire

$$\{\hat{\mathbf{c}}, \hat{\mathbf{r}}\} = \mathbf{R}(\mathbf{y}, \hat{\mathbf{b}}, \mathbf{x}_a, \mathbf{w}) = \mathbf{R}(\mathbf{f}(\mathbf{x}, \mathbf{b}) + \boldsymbol{\varepsilon}, \hat{\mathbf{b}}, \mathbf{x}_a, \mathbf{w}) \quad (5.1)$$

avec $\hat{\mathbf{c}} = \mathbf{C}(\hat{\mathbf{x}})$ le vecteur contenant les colonnes estimées (\mathbf{C} représentant l'opérateur calculant les différentes colonnes à partir du profil de rapport de mélange), de dimension $n_c = 4$ pour l'algorithme opérationnel $\hat{\mathbf{c}} = \{C6, C12, C16, CT\}$ et de dimension $n_c = 1$ pour l'algorithme "troposphérique" $\hat{\mathbf{c}} = \{C_{tropo}\}$ et $\hat{\mathbf{r}}$ le vecteur de dimension $n_r = 2$ contenant les luminances estimées. Le nombre total de sorties sera donc égal à $n_c + n_r$. Les quantités qui nous intéressent en priorité étant les colonnes d'O₃, nous omettons par la suite la composante $\hat{\mathbf{r}}$ du vecteur de sortie afin de simplifier les équations :

$$\hat{\mathbf{c}} = \mathbf{R}(\mathbf{y}, \hat{\mathbf{b}}, \mathbf{x}_a, \mathbf{w}) \quad (5.2)$$

Une part importante du développement du modèle neuronal est occupée par la phase de calibration au cours de laquelle les paramètres \mathbf{w} du RN sont déterminés à partir d'une base de données intégrant notre connaissance *a priori* de la physique du problème et de ses solutions. L'information \mathbf{x}_a nécessaire pour résoudre le problème inverse est donc implicite, contrairement à ce que l'on rencontre dans les formalismes plus classiques : elle est incluse dans les paramètres du modèle neuronal.

La base de données de calibration est constituée de simulations pour lesquelles des hypothèses sont faites quant aux paramètres du problème direct non inversés qui ne sont pas spécifiés, c'est-à-dire autres que le vecteur $\hat{\mathbf{b}}$ des températures d'entrée, par exemple les caractéristiques instrumentales et les paramètres spectroscopiques. La description précise de cette base de données et de la phase de calibration est présentée dans la partie 5.4.

Le problème inverse décrit par l'équation 5.2 peut donc s'écrire :

$$\hat{\mathbf{c}} = \mathbf{R}(\mathbf{y}, \hat{\mathbf{b}}, \mathbf{W}) \quad (5.3)$$

avec \mathbf{R} la fonction de transfert modélisée par le RN et \mathbf{W} l'ensemble des paramètres du RN. Avant de décrire le module d'inversion de l'O₃, nous allons présenter quelques notions de base sur les réseaux de neurones.

5.3.1 Notions de base sur les réseaux de neurones

Le but de ce paragraphe n'est pas d'exposer de manière détaillée les techniques des réseaux de neurones mais de donner les principes fondamentaux pour la compréhension du fonctionnement de l'algorithme. Une description complète est présentée dans *Bishop* [1995] (cas général), *Thiria et al.* [1993] (modélisation de fonctions de transfert) et *Hadjilazaro* [1999] (inversion de gaz traces à partir de spectres IR).

Un neurone est une fonction de transfert élémentaire qui calcule une sortie s_j à partir d'un ensemble d'entrées $\{s_i\}, i = 1, \dots, m$ (figure 5.3) :

$$s_j = f\left(\sum_{i=1}^m w_i^j s_i + \beta^j\right) \quad (5.4)$$

où f représente la fonction de transition (ou d'activation) du neurone, par exemple une fonction linéaire ou sigmoïde, et β^j le biais appliqué au neurone, qui permet de déplacer le seuil d'activation de la fonction de transition.

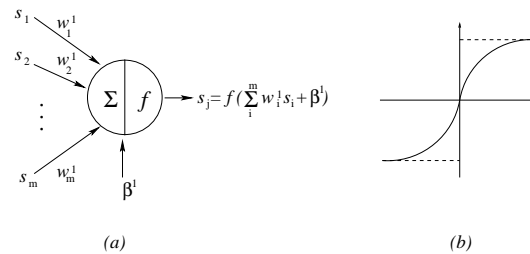


FIG. 5.3 – (a) Schéma d'un neurone ; (b) Exemple de fonction de transition : fonction de type sigmoïde.

Un RN est un ensemble de neurones inter-connectés. Chaque neurone reçoit et envoie de l'information aux neurones avec lesquels il est connecté. Les liaisons entre les neurones sont pondérées et un biais peut être appliqué à chaque neurone. L'association de tâches élémentaires simples permet au RN complet de résoudre des problèmes très complexes.

Les capacités du RN sont déterminées par son architecture, c'est-à-dire par le nombre de neurones, leurs fonctions de transition et la topologie de leurs connexions (et par l'ensemble des poids et biais regroupés dans la matrice \mathbf{W} des paramètres du RN).

La première étape dans la construction d'un RN efficace est donc de trouver l'architecture optimale, qui a suffisamment de degrés de liberté (c'est-à-dire de paramètres) pour résoudre le problème. Celle-ci est choisie sur la base de considérations empiriques et dépend de la complexité du problème à résoudre.

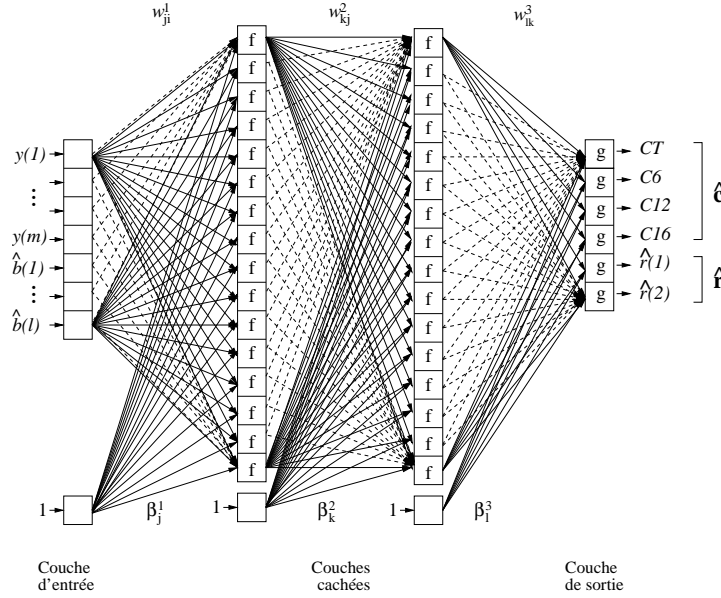


FIG. 5.4 – Schéma de l'architecture générale du réseau de neurones pour l'inversion opérationnelle de l'O₃. Il comprend 2 couches cachées de $S_1=S_2=16$ neurones chacune. Il restitue la colonne totale CT, les colonnes partielles C6, C12 et C16, ainsi que 2 luminances test $\hat{r}(1)$ et $\hat{r}(2)$ à partir des m canaux de luminance mesurés (\mathbf{y}), des $l-1$ températures atmosphériques associées sur des niveaux de pression fixés, et de la température de surface ($\hat{\mathbf{b}}$).

5.3.2 Architecture du réseau de neurones

Pour les problèmes d'inversion de données géophysiques, les différentes études réalisées ont montré qu'une architecture adaptée est un RN multi-couche à deux couches cachées [Thiria et al., 1993; Hadji-Lazaro, 1999] tel que celui présenté sur la figure 5.4.

Le RN se compose d'une couche d'entrée comprenant $m + l$ neurones (m luminances \mathbf{y} et l températures $\hat{\mathbf{b}}$) qui recopient les entrées de l'algorithme, de 2 couches cachées de S_1 et S_2 neurones et d'une couche de sortie de $n_c + n_r$ neurones. Les neurones des couches cachées et de sortie estiment les valeurs des sorties grâce aux fonctions de transition qui leur sont attribuées. La fonction de transfert \mathbf{R} à modéliser étant non-linéaire, des fonctions de transition sigmoïdes f ont été choisies pour chacun des neurones des couches cachées :

$$f(x) = \tanh(x) = \frac{e^x - e^{-x}}{e^x + e^{-x}} \quad (5.5)$$

La couche de sortie comprend $n_c + n_r$ neurones avec des fonctions de transition linéaires g :

$$g(x) = x \quad (5.6)$$

Les paramètres de l'architecture du RN sont résumés dans le tableau 5.1.

La fonction de transfert globale modélisée peut s'écrire :

$$\hat{c}(p) = g \left[\sum_{k=1}^{S_2} w_{pk}^3 \cdot f \left[\sum_{j=1}^{S_1} w_{kj}^2 \cdot f \left(\sum_{i=1}^m w_{ji}^1 \cdot y(i) + \sum_{i=m+1}^{m+l} w_{ji}^1 \cdot \hat{b}(i-m) + \beta_j^1 \right) + \beta_k^2 \right] + \beta_p^3 \right], \quad p = 1, \dots, n_c \quad (5.7)$$

TAB. 5.1 – Description de l'architecture et des sorties du RN pour l'inversion de l'O₃, (1) en mode opérationnel, (2) en mode "troposphérique". Le nombre de degrés de liberté du modèle neuronal est donné par le nombre de paramètres.

	Entrées ($m + l$)	S_1	S_2	Degrés de liberté	Sorties (colonnes)	Symboles	Unités
(1)	173 m = 147 l = 25 + 1	16	16	3158	Totale	CT	Unité Dobson ^a
					surface – 6 km	$C6$	DU
					surface – 12 km	$C12$	DU
					surface – 16 km	$C16$	DU
					Luminance 1 (976.75 cm ⁻¹)	$\hat{r}(1)$	$\times 10^{-8}$ W/(cm ² cm ⁻¹ sr)
					Luminance 2 (1034.75 cm ⁻¹)	$\hat{r}(2)$	$\times 10^{-8}$ W/(cm ² cm ⁻¹ sr)
(2)	173 m = 147 l = 25 + 1	16	16	3107	Troposphérique	$Ctropa$	DU
					Luminance 1 (976.75 cm ⁻¹)	$\hat{r}(1)$	$\times 10^{-8}$ W/(cm ² cm ⁻¹ sr)
					Luminance 2 (1034.75 cm ⁻¹)	$\hat{r}(2)$	$\times 10^{-8}$ W/(cm ² cm ⁻¹ sr)

^a 1 DU = 2.69 10¹⁶ molécules/cm²

et

$$\hat{r}(p - n_c) = g \left[\sum_{k=1}^{S_2} w_{pk}^3 \cdot f \left[\sum_{j=1}^{S_1} w_{kj}^2 \cdot f \left(\sum_{i=1}^m w_{ji}^1 \cdot y(i) + \sum_{i=m+1}^{m+l} w_{ji}^1 \cdot \hat{b}(i - m) + \beta_j^1 \right) + \beta_k^2 \right] + \beta_p^3 \right],$$

$$p = n_c + 1, \dots, n_c + n_r \quad (5.8)$$

où w_{ji}^1 , w_{kj}^2 et w_{pk}^3 représentent les matrices de poids des connexions avec $i=1, \dots, (m+l)$ les éléments de la couche d'entrée, $j=1, \dots, S_1$ les neurones de la 1^{ère} couche cachée, $k=1, \dots, S_2$ les neurones de la 2^{ème} couche cachée et $p=1, \dots, (n_c + n_r)$ les neurones de la couche de sortie. Les biais associés aux neurones sont les composantes des vecteurs β_j^1 , β_k^2 et β_p^3 .

Notons qu'il est conseillé de normaliser les entrées de l'algorithme afin de permettre une utilisation optimale des fonctions d'activation des neurones individuels. Nous avons normalisé les luminances et les températures d'entrée de la manière suivante :

$$\mathbf{y}_{\text{norm}} = 1.8 \frac{\mathbf{y} - \bar{\mathbf{y}}}{2 \text{dev}(\mathbf{y})} ; \quad \text{dev}(\mathbf{y}) = \max(\mathbf{y}_{\text{max}} - \bar{\mathbf{y}}; \bar{\mathbf{y}} - \mathbf{y}_{\text{min}})$$

et

$$\hat{\mathbf{b}}_{\text{norm}} = 1.8 \frac{\hat{\mathbf{b}} - \bar{\hat{\mathbf{b}}}}{2 \text{dev}(\hat{\mathbf{b}})} ; \quad \text{dev}(\hat{\mathbf{b}}) = \max(\hat{\mathbf{b}}_{\text{max}} - \bar{\hat{\mathbf{b}}}; \bar{\hat{\mathbf{b}}} - \hat{\mathbf{b}}_{\text{min}})$$

avec $(\bar{\mathbf{y}}, y_{\text{max}}, y_{\text{min}})$ et $(\bar{\hat{\mathbf{b}}}, \hat{\mathbf{b}}_{\text{max}}, \hat{\mathbf{b}}_{\text{min}})$ les valeurs moyennes, maximales et minimales des luminances et des températures respectivement, calculées sur l'ensemble des exemples considérés. Cette phase de normalisation sera implicite dans la suite de la description.

5.4 Développement du module d'inversion

Les paramètres \mathbf{W} du RN sont déterminés au cours d'une phase de calibration, ou d'apprentissage. Celle-ci consiste à minimiser une fonction de coût (équation 2.30) et nécessite pour cela une base de données connues comprenant à la fois les entrées et les sorties du problème. À la fin de la phase d'apprentissage, le RN est entièrement déterminé et capable de généraliser l'information apprise.

Les RN peuvent être considérés comme des estimateurs statistiques et peuvent calculer des paramètres significatifs seulement lorsqu'ils sont calibrés en utilisant des ensembles d'apprentissage statistiquement représentatifs de la situation réelle. Une attention particulière doit donc être portée à la constitution de la base de données d'apprentissage.

5.4.1 Constitution d'une base de données complète

La phase d'apprentissage du RN nécessite une base de données complète d'exemples connus et représentatifs du comportement de la fonction à estimer. Elle contient la physique du problème et constitue l'information *a priori* de l'inversion. Une partie de cette base de données est utilisée pour l'ajustement des paramètres \mathbf{W} du RN (poids et biais), pendant la phase d'apprentissage. Les exemples qui ne sont pas inclus dans cette base d'apprentissage sont utilisés pour constituer deux ensembles complémentaires : (1) l'ensemble de validation permet de vérifier la capacité de généralisation du RN pendant l'apprentissage, utilisée comme critère d'arrêt de la phase d'apprentissage ; (2) l'ensemble de test est utilisé après l'apprentissage pour évaluer les performances de l'inversion.

Afin de construire une base de données complète et réaliste, des spectres IASI ont été simulés en couplant :

- le code de transfert radiatif raie à raie haute résolution LBLRTM [Clough *et al.*, 1995b], rapidement décrit dans le paragraphe 2.1.5 ;
- les profils de rapport de mélange atmosphérique issus du modèle de chimie-transport MOZART [Brasseur *et al.*, 1998; Hauglustaine *et al.*, 1998] connectés à des climatologies au-dessus de la tropopause (climatologies UGAMP [Li and Shine, 1995]), brièvement décrits dans la section 1.3 ;
- les températures de surface et atmosphériques fournies par les analyses du Centre Européen de Prévision Météorologique à Moyen Terme (CEPMMT ou ECMWF en anglais — European Center for Medium-Range Weather Forecasts).

Les simulations ont d'autre part été réalisées avec une émissivité de surface constante moyenne de 0.9813 estimée à partir des valeurs fournies par Wilber *et al.* [1999], dans des conditions non-nuageuses et sans aérosol. Le relief n'a pas été pris en compte. Les spectres simulés ont ensuite été convolués par la fonction de réponse IASI [Camy-Peyret *et al.*, 2001] pour obtenir des données de niveau 1C. Le bruit instrumental a été pris en compte en ajoutant un bruit aléatoire Gaussien aux luminances.

Nous avons choisi de constituer une base de données représentative d'une année entière (afin d'obtenir un algorithme valable quelle que soit la période considérée). Nous avons cependant dû nous restreindre à un jour par saison car le coût de calcul très important des simulations haute résolution par le code raie à raie ne permet pas de simuler les spectres pour une grille complète de profils issus de modèles ou de climatologies sur toute l'année. Les profils d'ozone et de température pour les 1^{ers} des mois de janvier, d'avril, de juillet et d'octobre ont ainsi été arbitrairement choisis.

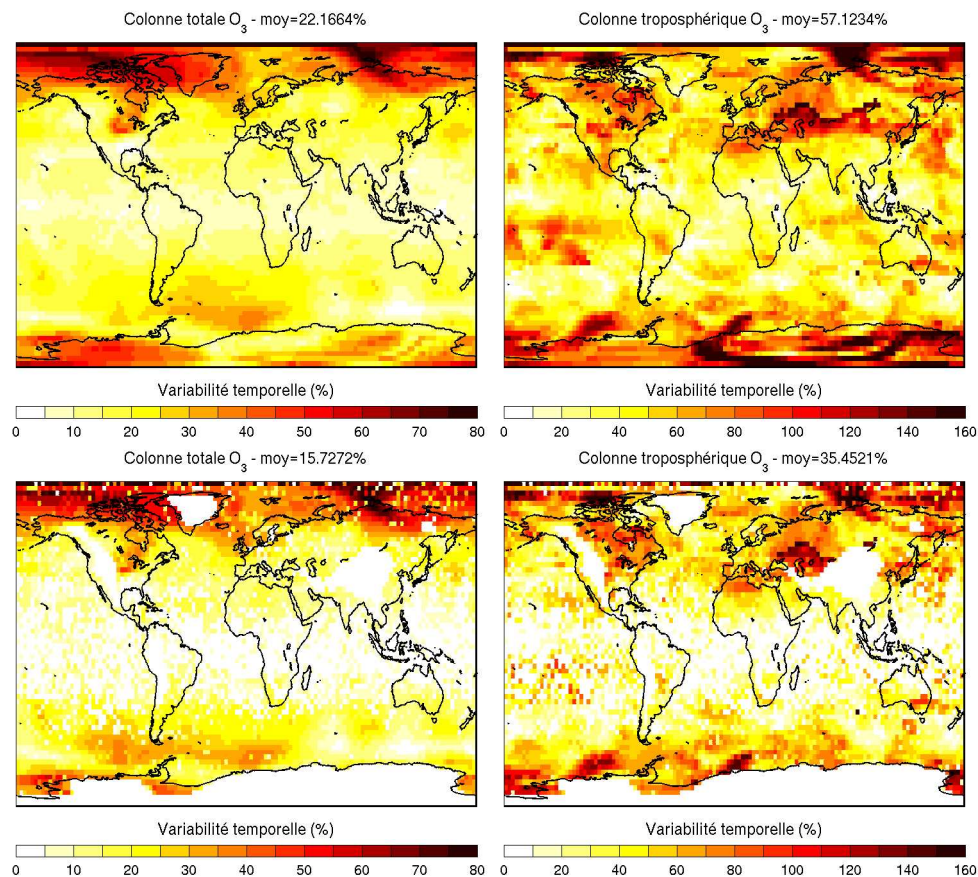


FIG. 5.5 – Variabilité temporelle de la colonne totale et de la colonne troposphérique d' O_3 pour les exemples de la base de données avant (figures du haut) et après (figures du bas) sélection des exemples représentatifs. Aucun exemple n'a été conservé au-dessus du relief (zones en blanc) : ils n'ont pas été pris en compte dans cette version de l'algorithme. La variabilité moyenne est indiquée au-dessus de chaque distribution.

La variabilité temporelle est représentée sur la figure 5.5 (cartes du haut). La variabilité temporelle moyenne sur ces 4 jours est de $\sim 22\%$ pour la colonne totale et $\sim 57\%$ pour la colonne troposphérique, et la variabilité spatiale moyenne de $\sim 89\%$ pour la colonne totale et $\sim 422\%$ pour la colonne troposphérique. D'après la discussion du paragraphe 1.3.3, sur l'année (1 jour par mois), la variabilité temporelle moyenne est plutôt $\sim 28\%$ pour la colonne totale et $\sim 93\%$ pour la colonne troposphérique et la variabilité spatiale moyenne $\sim 306\%$ et $\sim 1508\%$. Une partie de la variabilité annuelle est donc perdue en ne travaillant que sur un jour par saison.

Pour améliorer la capacité de généralisation du RN et éviter le forçage des résultats par des cas sur-représentés, la base de données doit représenter de manière homogène les différentes situations que l'algorithme devra traiter en phase opérationnelle. Une sélection d'exemples représentatifs a donc été réalisée dans l'espace des entrées. Nous avons pour cela utilisé une analyse en composantes principales pour réduire la dimension de cet espace. Les composantes principales ont été choisies pour exprimer plus de 90 % de la variance (seulement deux composantes permettent de représenter 93.5 % de la variance). Les exemples ont été sélectionnés afin d'obtenir la distribution la plus homogène possible

dans l'espace réduit des entrées.

Il est également conseillé d'utiliser une base d'apprentissage comprenant dix fois plus d'éléments que le nombre de paramètres à déterminer [Bishop, 1995]. Nous avons donc été limités dans la sélection par le grand nombre d'exemples nécessaires (plus de 30000 exemples pour le seul ensemble d'apprentissage). Le nombre d'exemples conservés après la sélection ($N = 40524$ exemples en tout) est représenté sur la figure 5.6. Le maximum de représentation d'un même point est de 8, correspondant aux exemples pour les 4 jours avec et sans bruitage des luminances. Quasiment tous les exemples de l'hémisphère Nord sont conservés. Les exemples retirés sont principalement des exemples situés dans les tropiques. C'est en effet la région où la variabilité temporelle est la plus faible dans le modèle, et donc également la région où l'information contenue dans l'espace des entrées est la plus redondante.

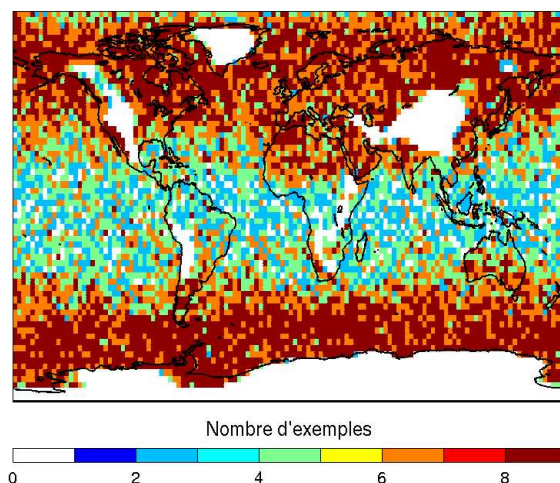


FIG. 5.6 – Nombre d'exemples par point de grille MOZART conservés dans la base de données après sélection des exemples représentatifs.

La variabilité temporelle sur les exemples considérés dans la base de données est représentée sur la figure 5.5 (cartes du bas). La variabilité temporelle est en moyenne de $\sim 16\%$ pour la colonne totale et 35% pour la colonne troposphérique. Une partie de la variabilité est retirée en enlevant les reliefs, cependant les distributions de la variabilité avant et après sélection sont similaires. La variabilité spatiale globale est en moyenne de 185% pour la colonne totale et 637% pour la colonne troposphérique. Ces valeurs sont beaucoup plus importantes que les valeurs de variabilité sur les 4 jours avant sélection (mais plus faibles que les valeurs de variabilité sur une année calculées dans le paragraphe 1.3.3).

La figure 5.7 représente la répartition des exemples dans l'espace des sorties (colonnes d'ozone), et montre que la base de données n'est pas tout à fait homogène dans cet espace. Les valeurs particulièrement fortes ou faibles sont en effet beaucoup moins nombreuses. Le RN aura donc certainement plus de difficultés à inverser ces cas extrêmes ($CT < 260$ DU et $CT > 360$ DU et/ou $C_{tropo} < 10$ DU et $C_{tropo} > 35$ DU).

La difficulté d'obtenir une représentation totalement homogène devrait limiter la capacité de généralisation de l'algorithme. D'autre part, l'utilisation d'exemples simulés, donc soumis à l'incertitude sur les modèles utilisés pour décrire l'état atmosphérique, pourrait

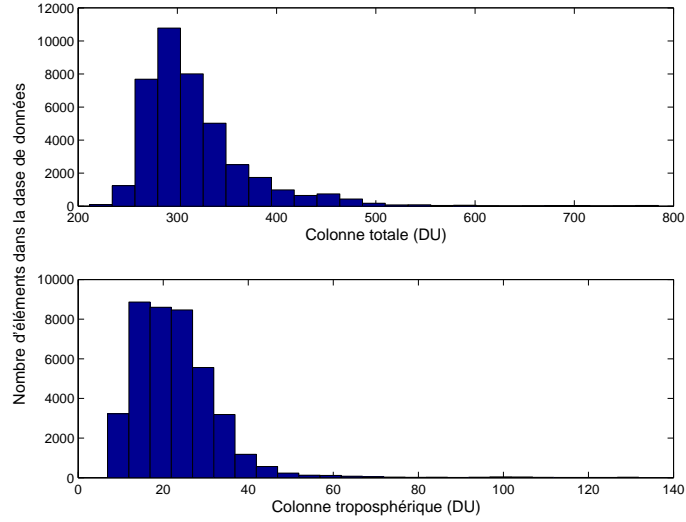


FIG. 5.7 – Nombre d'exemples de la base de donnée en fonction des valeurs de colonnes totales et troposphériques d' O_3 .

également biaiser les résultats et ainsi limiter les performances de l'inversion. En particulier, le modèle MOZART étant défini sur une grille $2.8^\circ \times 2.8^\circ$ et les climatologies sur une grille $2.5^\circ \times 2.5^\circ$, les profils d'ozone déduits seront fortement lissés par rapport à la réalité.

Cependant, la variabilité représentée dans la base de données est suffisamment importante pour permettre de bons résultats, comme nous le montrerons par la suite (section 5.5 et chapitre 6).

5.4.2 Phase d'apprentissage du réseau de neurones

Un apprentissage supervisé est utilisé pour la calibration de l'algorithme. La phase d'apprentissage consiste alors à ajuster les paramètres du RN de sorte que la sortie \hat{c} calculée par le RN soit en accord avec la sortie c désirée (état réel) pour les éléments de la base d'apprentissage.

Un algorithme de descente de gradient stochastique permet la minimisation de la fonction de coût $\mathcal{C}(\mathbf{W})$ qui caractérise la différence quadratique entre sortie calculée et sortie désirée (*cf.* paragraphe 2.2.3) :

$$\mathcal{C}(\mathbf{W}) = \|c - \hat{c}\|^2 \quad (5.9)$$

La matrice \mathbf{W} de paramètres du RN, initialisée avec des valeurs aléatoires dans un premier temps, est modifiée après chaque présentation d'un exemple i de la base d'apprentissage :

$$\mathbf{W}^i = \mathbf{W}^{i-1} - \eta \nabla(\mathcal{C}^i) \quad (5.10)$$

où η est le taux d'apprentissage. Il doit être choisi avec soin afin d'accéder à un minimum global de la fonction de coût [Bishop, 1995]. Le gradient $\nabla(\mathcal{C}^i)$ de la fonction de coût pour l'exemple i est estimé par rétropropagation.

L'évolution de l'apprentissage est suivie avec la moyenne quadratique E de la différence entre sortie calculée et sortie désirée pour les N exemples des ensembles d'apprentissage

d'une part et de validation d'autre part :

$$E = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \|\mathbf{c} - \hat{\mathbf{c}}\|^2} \quad (5.11)$$

L'utilisation d'un ensemble de validation non inclus dans l'ensemble d'apprentissage permet d'éviter le phénomène de sur-apprentissage par validation croisée [Bishop, 1995] : si l'erreur estimée sur l'ensemble d'apprentissage continue de diminuer alors que l'erreur estimée sur l'ensemble de validation augmente, la capacité de généralisation du RN diminue. En pratique, l'apprentissage est stoppé lorsque l'erreur estimée sur l'ensemble de validation cesse de diminuer de manière significative (E minimum), avant le sur-apprentissage. La figure 5.8 montre la convergence vers le minimum d'erreur au cours de l'apprentissage du RN opérationnel (montré pour la restitution des colonnes uniquement). La convergence se fait à un rythme plus ou moins rapide selon la difficulté du problème. Elle est par exemple beaucoup moins rapide pour $C6$ que pour CT pour laquelle la variabilité dans la base de données est plus faible. Cependant, un minimum global est atteint au bout d'un certain nombre d'itérations.

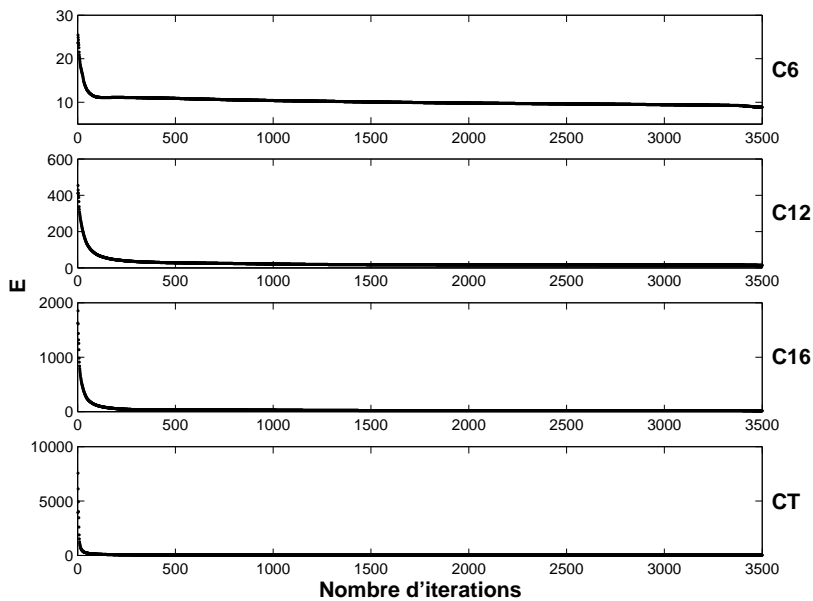


FIG. 5.8 – Évolution de la moyenne quadratique E de la différence entre sortie calculée et sortie désirée pour les N exemples de l'ensemble d'apprentissage.

À la fin de la phase d'apprentissage, la matrice \mathbf{W} est fixée. Différentes architectures sont évaluées sur l'ensemble de test afin de choisir la plus adaptée au problème étudié. Dans le cas de nos études, les paramètres des architectures choisies sont résumés dans le tableau 5.1.

Une fois l'architecture déterminée, la phase opérationnelle peut démarrer. La phase d'apprentissage nécessite un long temps de calcul à cause du processus de minimisation. La phase opérationnelle, qui consiste simplement en des calculs algébriques, est extrêmement rapide (moins d'1 seconde par spectre).

5.5 Caractérisation des inversions et analyse de l'erreur

Cette partie a pour but de fournir une évaluation complète des performances et de la précision de l'inversion, nécessaire pour une utilisation optimale des données restituées.

Une étude de sensibilité est tout d'abord réalisée afin de caractériser les quantités inversées, et ainsi évaluer les capacités du système d'observation (c'est-à-dire de l'instrument et de l'algorithme de traitement des mesures associé). Cette étude complète les études de sensibilité préliminaires présentées dans le chapitre précédent. Celles-ci ont permis de vérifier la sensibilité des spectres mesurés aux deux principales régions atmosphériques qui nous intéressent pour l'étude de l'ozone : la stratosphère et la troposphère. Elles ont également mis en évidence la résolution verticale limitée de l'instrument, estimée à 8–10 km pour l'ozone.

Dans le cas de l'inversion d'une colonne intégrée, la sensibilité de l'instrument dépend également fortement de l'altitude et cette dépendance peut entraîner de fortes erreurs systématiques. Un biais sur l'évaluation de la colonne totale d'ozone à partir d'un canal spectral de la bande ν_3 d'absorption de l'ozone ($9.7 \mu m$) a été mis en évidence par les études de *Drouin et Karcher* [2003] pour l'instrument TOVS, et nous montrerons dans cette partie (paragraphe 5.5.2) qu'une incertitude relativement importante est introduite dans nos inversions des spectres IR IASI par cette dépendance verticale de la sensibilité.

Dans cette partie, nous utilisons le même formalisme que pour l'inversion d'un profil (i.e. calcul des fonctions de poids ou Jacobiens \mathbf{K} , du gain de l'inversion \mathbf{G} et des noyaux \mathbf{A} associés), mais appliqué à l'inversion des colonnes effectuée grâce à l'algorithme neuronal développé.

Le niveau de performance atteint et la précision attendue sont étudiés ainsi que la possibilité d'utiliser les deux luminances inversées pour tester la consistance interne de la méthode d'inversion.

5.5.1 Sensibilité du système d'observation

La sensibilité du système d'observation complet (instrument et algorithme) est donnée par la matrice des noyaux \mathbf{A} (fonctions de lissage ou *averaging kernels* en anglais).

Nous avons vu dans la section 2.2.1 que l'inversion peut être linéarisée de la manière suivante [*Rodgers, 2000*] :

$$\begin{aligned}\hat{\mathbf{x}} &= \mathbf{x}_a + \mathbf{A}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{G}_y \boldsymbol{\varepsilon}_y \\ &= (\mathbf{I}_n - \mathbf{A})\mathbf{x}_a + \mathbf{A}\mathbf{x} + \mathbf{G}_y \boldsymbol{\varepsilon}_y\end{aligned}\tag{5.12}$$

où la matrice \mathbf{A} représente la sensibilité de l'inversion à l'état réel et caractérise donc le système d'observation :

$$\mathbf{A} = \mathbf{G}_y \mathbf{K}_x = \frac{\partial \hat{\mathbf{x}}}{\partial \mathbf{x}}\tag{5.13}$$

Dans le cas de l'inversion d'un profil sur n niveaux atmosphériques d'une variable géophysique, \mathbf{A} est une matrice de dimension $n \times n$, et pour une inversion idéale, \mathbf{A} est une matrice identité \mathbf{I}_n .

Dans notre cas, une matrice équivalente à \mathbf{A} peut être utilisée pour caractériser l'inversion de colonnes (afin de quantifier leur profil de sensibilité). C'est alors une matrice

$n_c \times n$. Pour une inversion idéale, \mathbf{A} est égale à \mathbf{C} , l'opérateur colonne. Nous avons alors :

$$\begin{aligned}\hat{\mathbf{c}} &= \mathbf{C} \hat{\mathbf{x}} = \mathbf{C} \mathbf{x}_a + \mathbf{A}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{G}_y \boldsymbol{\varepsilon}_y \\ &= (\mathbf{C} - \mathbf{A}) \mathbf{x}_a + \mathbf{A} \mathbf{x} + \mathbf{G}_y \boldsymbol{\varepsilon}_y\end{aligned}\quad (5.14)$$

avec maintenant

$$\mathbf{A} = \mathbf{G}_y \mathbf{K}_x = \frac{\partial \hat{\mathbf{c}}}{\partial \mathbf{x}} \quad (5.15)$$

et

$$\mathbf{G}_y = \frac{\partial \hat{\mathbf{c}}}{\partial \mathbf{y}} \quad (5.16)$$

les fonctions de gain de l'algorithme (encore appelées fonctions de contribution) qui caractérisent la sensibilité de l'inversion aux luminances d'entrée. De la même manière, la sensibilité de l'inversion aux températures d'entrée est donnée par :

$$\mathbf{G}_b = \frac{\partial \hat{\mathbf{c}}}{\partial \mathbf{b}} \quad (5.17)$$

Si nous considérons que l'état \mathbf{x} est le profil de concentration de l' O_3 , alors l'opérateur colonne \mathbf{C} peut être représenté par une simple intégration discrète sur les niveaux verticaux du profil \mathbf{x} , entre les deux niveaux limites de l'intégration. Ici les colonnes partielles sont calculées entre la surface et le niveau n_{\max} (égal à 6, 12 ou 16 km d'altitude, ou à l'altitude de la tropopause) :

$$C^{n_{\max}} = \sum_{i=1}^{n_{\max}} x_i \Delta z_i = \Delta \mathbf{z}^{n_{\max} \mathbf{x}} \quad (5.18)$$

avec $\Delta \mathbf{z}$ l'échantillonnage vertical du profil et n_{\max} le niveau maximum de l'intégration. La colonne est généralement exprimée en molécules/cm² ou en unités Dobson pour l'ozone (1 DU=2.69 10¹⁶ molécules/cm²). Pour un profil de concentration d'ozone défini tous les kilomètres et exprimé en molécules/cm³, $\Delta \mathbf{z}$ est alors un vecteur dont les éléments sont égaux à 10⁵ jusqu'à n_{\max} et nuls au-delà (la puissance de dix correspondant à la conversion entre km et cm). Dans la suite, nous nous placerons dans ce cas, avec $\mathbf{C} = \{\Delta \mathbf{z}^{n_{\max}}, n_{\max} = 1, \dots, n_c\}$.

Pour cette caractérisation, l'état de l'atmosphère (profils de pression, de température et d' O_3) doit donc être connu. L'étude ne pouvant être menée sur chacun des exemples de l'ensemble d'apprentissage du RN, nous avons choisi de considérer, ici encore, l'exemple de l'atmosphère standard US 1976 (figure 4.1). Pour cet exemple, l'erreur d'inversion est de 4 % pour $C6$, 2 % pour $C12$, 1.5 % pour $C16$, 5 % pour CT et 22 % pour $Ctropa$. Cette dernière erreur est plus importante et illustre la difficulté de l'algorithme à déterminer l'altitude de la tropopause.

Sensibilité de l'instrument

Cette sensibilité a été étudiée en détail dans le chapitre 4. La matrice \mathbf{K}_x caractérisant la sensibilité des luminances d'entrée à l' O_3 a été calculée en utilisant une méthode de perturbation du profil de concentration d' O_3 :

$$\mathbf{K}_x = \frac{\partial \mathbf{y}}{\partial \mathbf{x}} \sim \frac{\Delta \mathbf{y}}{\Delta \mathbf{x}} \quad (5.19)$$

Les résultats obtenus sont exposés dans la partie 4.1.

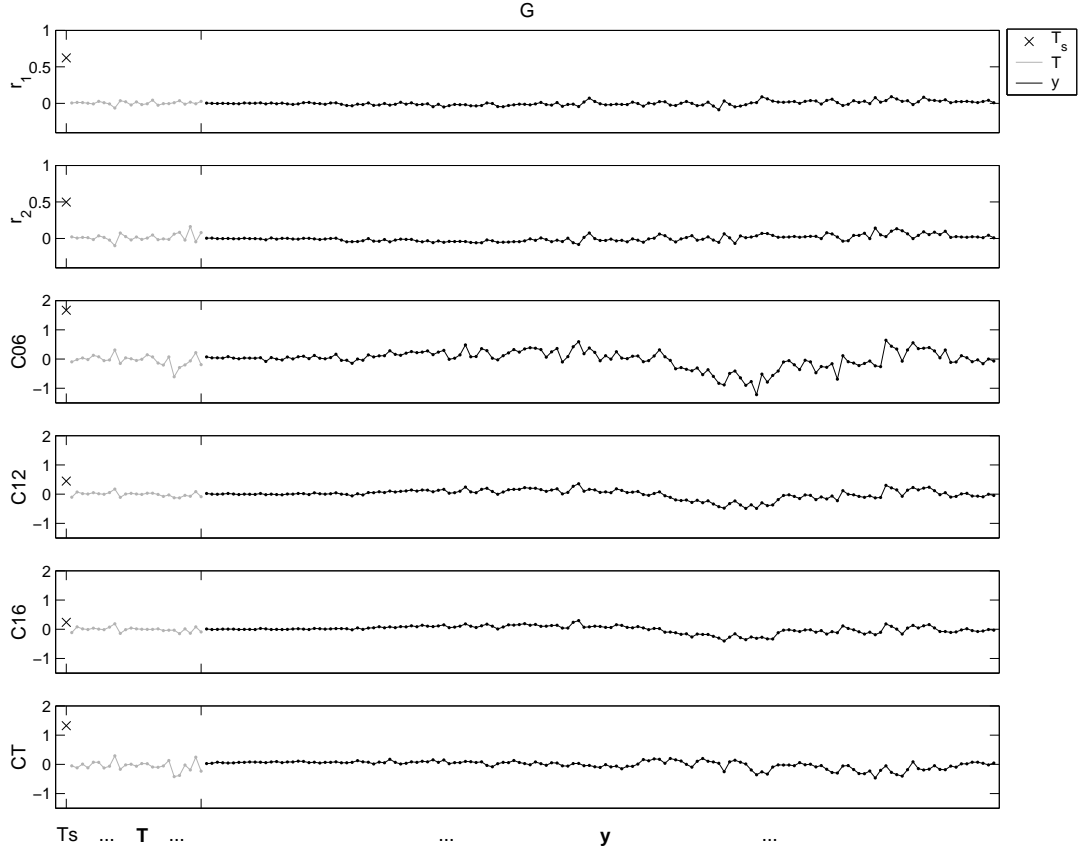


FIG. 5.9 – Fonctions de gain \mathbf{G} normalisées caractérisant la sensibilité des sorties de l'algorithme opérationnel aux différents paramètres d'entrée.

Sensibilité de l'algorithme d'inversion

Les fonctions de gain \mathbf{G} peuvent ici être calculées de manière analytique pour chaque inversion par dérivation de la fonction de transfert globale du RN (équation 5.7) par rapport aux entrées \mathbf{y} et $\hat{\mathbf{b}}$. $\mathbf{G}_{\mathbf{y}}$ est une matrice $n_c \times m$, où chaque élément $\mathbf{G}_{\mathbf{y}}^{p,i} = \partial \hat{c}_p / \partial y_i$ correspond à la contribution d'une certaine entrée y_i à l'inversion de la colonne \hat{c}_p , avec $i = 1, \dots, m$ et $p = 1, \dots, n_c$ (de la même manière, $\mathbf{G}_{\hat{\mathbf{b}}}$ est une matrice $n_c \times l$).

La fonction de transfert globale du RN est une fonction non-linéaire. Ses dérivées caractérisent donc des sensibilités non-linéaires entre les variables d'entrée et de sortie [Aires et al., 2001]. Les figures 5.9 et 5.10 représentent les fonctions de gain obtenues pour l'atmosphère standard US 1976, normalisées par la déviation standard des variables (calculée sur un grand ensemble de simulations), $\mathbf{G}_{\mathbf{y}} = (\partial \hat{\mathbf{c}} / \partial \mathbf{y}) \times (\sigma(\mathbf{y}) / \sigma(\hat{\mathbf{c}}))$, ce qui permet la comparaison des contributions de variables de variabilités différentes [Aires et al., 2001].

Les fonctions obtenues sont difficiles à interpréter mais quelques caractéristiques du comportement de l'algorithme ressortent cependant. Tout d'abord, la sensibilité à la température de surface est importante pour toutes les variables inversées. Les luminances test inversées semblent relativement moins sensibles aux luminances entrées que les colonnes d'O₃. Leur sensibilité à la température de surface est très dominante (> 10 fois plus forte que leur sensibilité aux autres entrées). La sensibilité des colonnes aux luminances d'en-

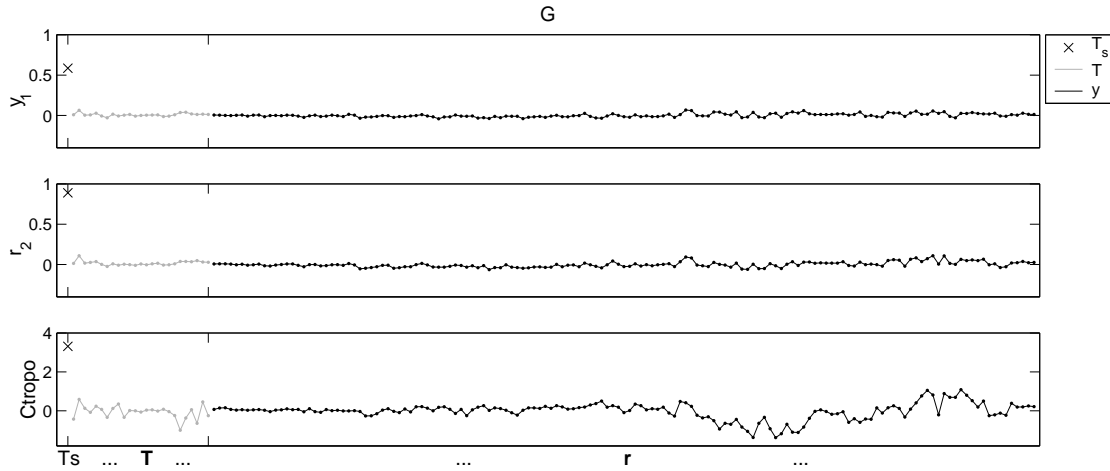


FIG. 5.10 – Même chose que la figure 5.9 mais pour l'algorithme "troposphérique" inversant C_{tropo} .

trée est plus importante, en particulier pour C_{tropo} , $C6$ et $C12$. Les colonnes C_{tropo} , $C6$ et CT sont également très sensibles aux températures d'entrée.

Même si les différentes variables sont très sensibles à la température de surface fournie, la comparaison de l'inversion par RN avec d'autres méthodes d'inversion, réalisée pour le CO [Clerbaux et al., 2002], a montré que l'impact de la température de surface est fortement minimisé par l'utilisation de luminances différentielles en entrée.

La forte sensibilité des luminances test inversées à la température de surface pourrait d'autre part provenir du fait que des luminances différentielles sont considérées en entrée du RN (soustraites à la ligne de base du corps gris) alors que des luminances absolues doivent être restituées.

L'utilisation d'un gain normalisé pour la représentation implique que les valeurs seront d'autant plus importantes que la variance $\sigma(\hat{c})$ est petite, et que la variance $\sigma(y)$ est grande. Ceci explique la plus grande sensibilité des colonnes les plus faibles, C_{tropo} , $C6$ et $C12$, ainsi que la plus forte sensibilité aux luminances les plus intenses.

La plus forte sensibilité de certaines variables inversées par rapport aux paramètres d'entrée pourrait être due au manque d'information dans les spectres. L'apport de paramètres supplémentaires est alors nécessaire afin de lever les éventuelles ambiguïtés et de déterminer la solution la plus probable. Pour C_{tropo} , $C6$ et CT en particulier, une information statistique sur la couche limite atmosphérique ou sur la haute stratosphère est nécessaire.

Sensibilité du système d'observation complet

En combinant les deux fonctions de sensibilité \mathbf{K}_x et \mathbf{G}_y , la sensibilité des colonnes d' O_3 inversées au profil de concentration d' O_3 , caractérisant la sensibilité du système d'observation, peut être estimée par la matrice \mathbf{A} de dimension $n_c \times n$. Les luminances entrées au RN étant des luminances relatives (soustraites à la ligne de base du corps gris), les Jacobiens \mathbf{K}_x doivent ici également être exprimé en luminances relatives : ils représentent alors la sensibilité des luminances relatives à la distribution verticale de l'ozone.

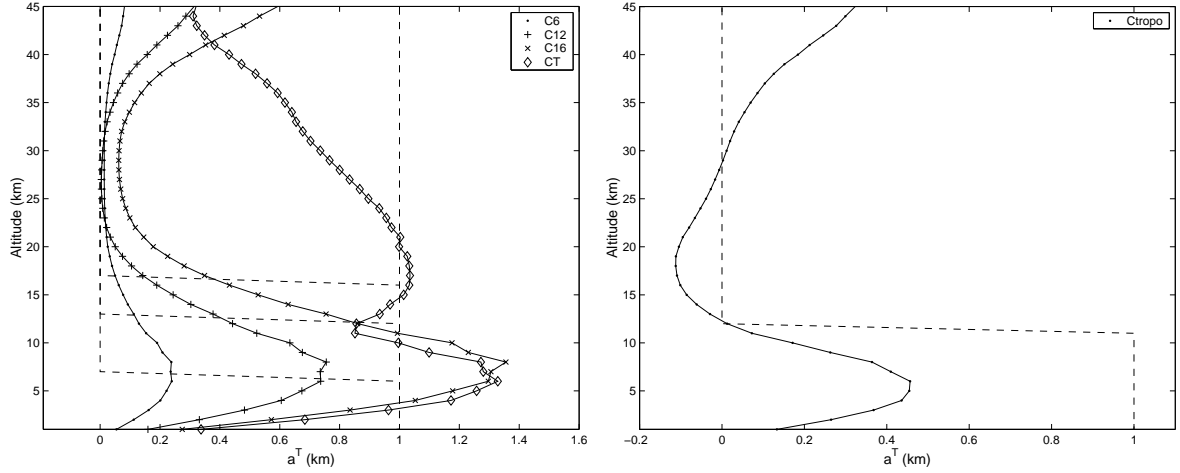


FIG. 5.11 – Noyaux obtenus pour l'atmosphère standard US 1976, caractérisant la sensibilité des colonnes CT, C6, C12 et C16 de l'algorithme opérationnel (figure de gauche) et de la colonne troposphérique (figure de droite). Les courbes en pointillés représentent les opérateurs colonnes idéaux (c'est-à-dire les noyaux idéaux).

Les noyaux obtenus pour l'atmosphère standard US 1976 sont représentés sur la figure 5.11. Ils correspondent aux lignes de la matrice \mathbf{A} et sont notés \mathbf{a}_c^T ($c=1, n_c$), i.e. n_c vecteurs (pour les colonnes partielles ou totales) de dimension $n \times 1$. Le comportement général des différents noyaux est similaire à celui des Jacobiens \mathbf{K}_x , avec des signes opposés (une augmentation de la concentration implique une diminution de la luminance sortante mais une augmentation des colonnes). Pour toutes les colonnes inversées, la sensibilité la plus importante est atteinte dans la troposphère libre et diminue dans la couche limite atmosphérique. La faible sensibilité aux premières couches aura un impact d'autant plus important que la colonne calculée est faible (ou que la limite supérieure d'intégration est basse). Pour les colonnes partielles, une incertitude relativement forte peut aussi provenir de la contribution d'altitudes supérieures au sommet de la colonne calculée. Pour CT, un pic secondaire est obtenu autour de 15-20 km d'altitude, et la sensibilité reste importante à travers toute la stratosphère (jusqu'à 35-40 km), où les concentrations d'O₃ sont suffisamment importantes pour compenser la sensibilité relativement faible de l'instrument. La sensibilité plus faible à la haute stratosphère pourra cependant avoir un impact pour cette variable.

L'analyse de la sensibilité du système d'observation est donc indispensable à une bonne compréhension des quantités inversées. Elle joue un rôle crucial dans la validation et l'exploitation des données inversées : elle doit être connue afin de permettre la comparaison directe des inversions avec d'autres observations ou avec des sorties de modèles [Rodgers and Connor, 2003]. Si le noyau \mathbf{A} est correctement évalué, il permet en effet de s'affranchir des erreurs systématiques introduites par la méthode d'inversion, en particulier par l'information *a priori* utilisée [Drouin and Karcher, 2003; Eskes and Boersma, 2003].

\mathbf{A} est cependant fortement dépendant de la situation considérée, et doit donc être spécifié pour chaque observation. D'autre part son évaluation requiert des simulations du modèle direct (pour le calcul de \mathbf{K}_x) et donc une connaissance exacte de l'état réel de l'atmosphère (de \mathbf{x} en particulier). Pour ces raisons, \mathbf{A} doit être évalué sur un ensemble de cas représentatifs connus. Une méthode de classification peut être utilisée afin de

sélectionner les cas de référence, avec les profils verticaux \mathbf{x} et les noyaux correspondants, classifiés selon les conditions physiques et/ou géographiques. Le cas de référence le plus proche peut ensuite être associé à chaque inversion. La méthode utilisée est exposée dans la partie 5.6.

Nous noterons que le même type d'étude peut être mené pour l'inversion des luminances, avec la linéarisation suivante :

$$\hat{\mathbf{r}} = \mathbf{r}_a + \mathbf{A}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{G}_y \boldsymbol{\varepsilon}_y \quad (5.20)$$

avec

$$\mathbf{A} = \mathbf{G}_y \mathbf{K}_x = \frac{\partial \hat{\mathbf{r}}}{\partial \mathbf{x}} \quad (5.21)$$

et

$$\mathbf{G}_y = \frac{\partial \hat{\mathbf{r}}}{\partial \mathbf{y}} \quad (5.22)$$

Le cas idéal est alors d'avoir une matrice de gain \mathbf{G}_y identité et $\mathbf{A} = \mathbf{K}_x(\mathbf{r})$ (modélisation du transfert radiatif linéarisé). La figure 5.12 représente le noyau de la radiance $\hat{r}(2)$, qui

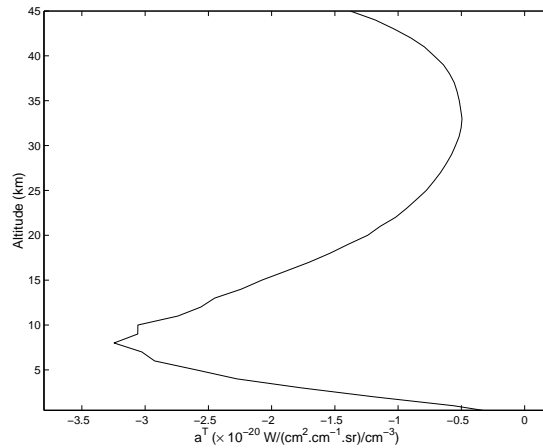


FIG. 5.12 – Noyau obtenu pour l'atmosphère standard US 1976, caractérisant la sensibilité de la radiance $\hat{r}(2)$ de l'algorithme opérationnel.

correspond à une forte signature de l'ozone et peut donc être comparé directement aux Jacobiens \mathbf{K} calculés au chapitre précédent (partie 4.1, figure 4.2). La forme des profils à basse altitude est similaire, ainsi que l'ordre de grandeur. Cette bonne sensibilité (proche du cas idéal où $\mathbf{A} = \mathbf{K}_x(\mathbf{r})$) est cohérente avec les bonnes performances obtenues pour l'inversion.

5.5.2 Performances de l'algorithme

Performance statistique du RN

Afin de tenir compte des capacités statistiques du RN et de la non-linéarité de la fonction de transfert modélisée, une approche statistique a été employée pour estimer les performances de l'algorithme. Le RN est calibré au cours de la phase d'apprentissage. Les erreurs associées au système d'observation sont donc très dépendantes de la qualité de la

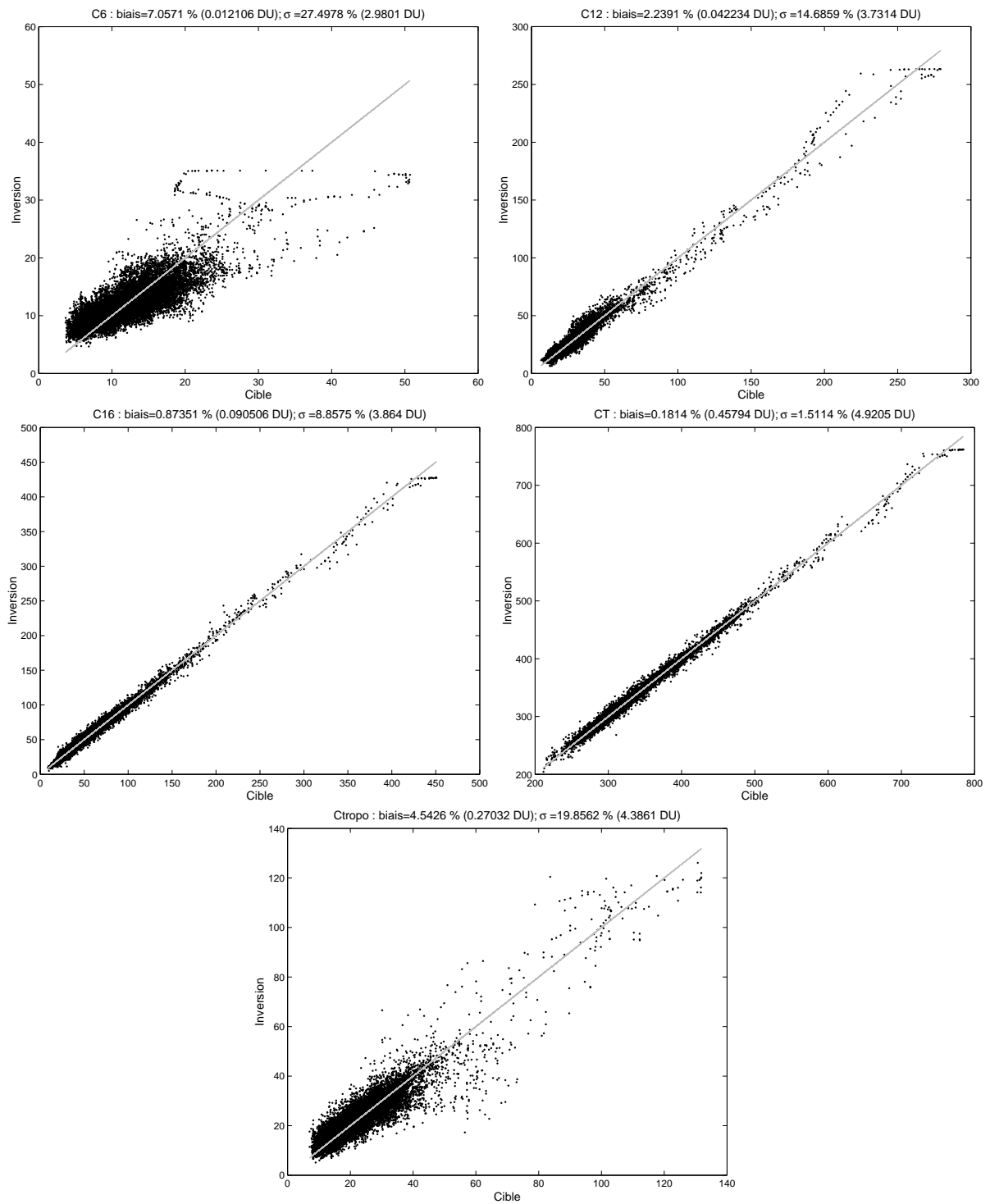


FIG. 5.13 – Diagrammes de dispersion des colonnes inversées par le RN (sorties calculées) en fonction des colonnes obtenues à partir des profils issus du modèle (sorties désirées) en DU, pour l'ensemble de données test composé de 17000 exemples et pour la restitution des colonnes C6, C12, C16, CT et Ctropo.

TAB. 5.2 – Performances de l'algorithme évaluées sur une base de données de test composée de 17000 simulations. Le biais moyen entre les colonnes calculées et les colonnes désirées ainsi que l'erreur RMS globale sont calculés pour chaque variable et pour différents domaines de \mathbf{c} (en unité Dobson, DU, et en pourcentage de la valeur désirée entre parenthèses).

	Domaine (DU)	biais - DU (%)	RMS - DU (%)
$C6$	complet	0.01 (7.1)	3 (28.4)
	$C6 \leq 6$	3.2 (62.4)	3.5 (68.9)
	$6 < C6 \leq 20$	0.06 (4.7)	2.6 (23.3)
	$C6 > 20$	-4.7 (-18.7)	6.7 (26)
$C12$	complet	0.04 (2.2)	3.7 (14.8)
	$C12 \leq 12$	3 (27.8)	3.6 (33)
	$12 < C12 \leq 45$	0.1 (1.9)	3.3 (14.4)
	$C12 > 45$	-1.7 (-1.8)	7.5 (9.1)
$C16$	complet	0.1 (0.9)	3.9 (8.9)
	$C16 \leq 20$	0.1 (0.6)	2.1 (11.9)
	$20 < C16 \leq 100$	0.2 (1.1)	3.6 (9)
	$C16 > 100$	-1.6 (-1.1)	6.9 (4.4)
CT	complet	0.4 (0.2)	4.9 (1.5)
	$CT \leq 260$	2.6 (1)	5.1 (2)
	$260 < CT \leq 500$	0.4 (0.1)	4.8 (1.5)
	$CT > 500$	-1.4 (-0.2)	11.6 (1.8)
$Ctropo$	complet	0.3 (4.5)	4.4 (20.4)
	$Ctropo \leq 10$	3.2 (35.9)	4.1 (46.2)
	$10 < Ctropo \leq 35$	0.6 (4.7)	3.6 (19)
	$Ctropo > 35$	-4 (-8.6)	9.4 (18.7)

base de données utilisée, c'est-à-dire de la représentation statistique des exemples choisis et de leur qualité. Ici, nous supposons des simulations parfaites, sans incertitude due à l'atmosphère synthétique utilisée (profils d'O₃ issus du modèle MOZART raccordé aux climatologies UGAMP, températures ECMWF) ni aux paramètres spectroscopiques et au modèle de transfert radiatif. Seule l'homogénéité de la base de données est considérée. Pour cela, l'erreur d'inversion est estimée sur une base de données de test composée d'exemples connus et similaires aux exemples de la base d'apprentissage (même type de simulations et même distribution), mais qui n'ont pas été utilisés au cours de la phase d'apprentissage du RN.

Pour chaque exemple de la base de test, les valeurs inversées ($\hat{\mathbf{c}}$) ont été comparées aux valeurs désirées correspondantes (état réel \mathbf{c}). La figure 5.13 représente les diagrammes de dispersion de la base de test pour les différentes variables inversées. L'accord est globalement très bon. Les nuages de point sont bien distribués autour de la première bissectrice, sans biais apparent excepté pour les colonnes extrêmement faibles, que le RN semble sur-estimer, et pour les fortes valeurs, que le RN semble au contraire sous-estimer. Les diagrammes mettent également en évidence la plus faible représentation de ces valeurs "extrêmes" (densités de points apparemment plus faibles), ce qui était également visible sur les histogrammes de la base de données dans l'espace des sorties (figure 5.7).

Afin d'examiner les performances en fonction de la concentration cible, la base de test a été divisée en trois domaines (faibles, moyennes et fortes valeurs) pour chaque variable. Pour chacun de ces intervalles, le biais $\hat{\mathbf{c}} - \mathbf{c}$ et l'erreur RMS $\sqrt{\sum(\hat{\mathbf{c}} - \mathbf{c})^2 / (N - 1)}$ associée ont été calculés. Les valeurs moyennes obtenues sont données dans le tableau 5.2. Les erreurs les plus importantes sont obtenues pour les cas “extrêmes”, avec une nette tendance à sur-estimer les faibles valeurs (biais positif) et à sous-estimer les fortes valeurs (biais négatif). Pour les valeurs moyennes, le biais est généralement faible.

Les inversions seront donc biaisées pour les valeurs les plus extrêmes qui sont sous-représentées dans l'ensemble d'apprentissage. Une sous-représentation de certains cas dans l'espace des entrées (températures de surface extrêmes par exemple) pourra également introduire une incertitude sur les inversions. Une très forte erreur est donc attendue pour des données d'entrée qui ne sont pas consistantes avec l'apprentissage du RN. Les performances de l'algorithme pourraient d'autre part être dégradées aux bords du domaine couvert par l'ensemble d'apprentissage. Le domaine des valeurs possibles devrait probablement être élargi afin de minimiser l'impact de ces “effets de bords” sur les situations réalistes.

Hormis ces cas extrêmes, les performances du RN sont très satisfaisantes compte tenu de la variabilité des quantités inversées. Globalement, l'erreur RMS est estimée à moins de 3 DU (28 %) pour *C6*, 3.7 DU (15 %) pour *C12*, 4 DU (9 %) pour *C16*, 5 DU (1.5 %) pour *CT* et 4.5 DU (20 %) pour *Ctropo* (tableau 5.2).

Analyse de l'erreur

En utilisant l'équation 5.14 caractérisant l'inversion linéarisée, la différence entre l'inversion $\hat{\mathbf{c}}$ et l'état réel \mathbf{c} peut s'écrire [Rodgers, 2000] :

$$\hat{\mathbf{c}} - \mathbf{c} = (\mathbf{A} - \mathbf{C})(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{G}\boldsymbol{\varepsilon} \quad (5.23)$$

Cette équation met en évidence les deux principales sources d'erreur à considérer. Le premier terme de cette équation correspond à l'erreur de lissage, associée à la sensibilité non-idéale du système d'observation à l'état réel, et le second à une erreur associée aux incertitudes sur les entrées du problème inverse.

Erreur de lissage

L'erreur de lissage dépend à la fois de la déviation entre les noyaux calculés \mathbf{A} et idéaux \mathbf{C} et de la variabilité de la quantité inversée. L'état réel \mathbf{x} n'étant pas connu, l'erreur de lissage ne peut pas être déterminée de manière exacte. Une information statistique sur cette erreur peut cependant être obtenue en calculant sa matrice de covariance \mathbf{S}_s (de dimension $n_c \times n_c$). Celle-ci est calculée à partir de la moyenne et de l'écart type d'un ensemble d'exemples connus, qui peuvent être décrits par \mathbf{x}_a et \mathbf{S}_a (information *a priori*). La matrice \mathbf{S}_s , représentant la covariance de l'erreur de lissage par rapport à l'état moyen, est ainsi définie par :

$$\begin{aligned} \mathbf{S}_s &= \mathcal{E}((\mathbf{A} - \mathbf{C})(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)^T(\mathbf{A} - \mathbf{C})^T) \\ &= (\mathbf{A} - \mathbf{C})\mathcal{E}((\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)^T)(\mathbf{A} - \mathbf{C})^T \\ &= (\mathbf{A} - \mathbf{C})\mathbf{S}_a(\mathbf{A} - \mathbf{C})^T \end{aligned} \quad (5.24)$$

Dans le cas de l'inversion par RN, la matrice de covariance *a priori* \mathbf{S}_a représente la variabilité dans le sous-espace associé au profil *a priori* considéré. Elle peut être calculée en utilisant les profils de concentration d'O₃ associés aux exemples de la base d'apprentissage. Il est cependant difficile d'estimer correctement la variabilité des solutions possibles pour un profil *a priori* donné. Aussi, nous avons ici choisi d'utiliser la variabilité globale de l'ensemble d'apprentissage. Cette variabilité est donc importante, et l'erreur de lissage résultante (estimée en calculant la racine carrée de la diagonale de \mathbf{S}_s) sera une approximation de l'incertitude globale associée au manque de sensibilité. Elle ne tiendra pas compte de la capacité statistique du RN à se placer dans le cas appris le plus proche du cas réel considéré (dans l'espace des entrées), et sera donc sur-estimée. L'étude de l'erreur de lissage donne cependant une information utile sur l'importance relative de la contribution statistique.

Pour l'exemple de l'atmosphère standard (figure 5.11), l'erreur de lissage est estimée en calculant la racine des éléments diagonaux de \mathbf{S}_s . Elle est ainsi évaluée à ~ 5 DU (36 %) pour *C6*, 6 DU (16 %) pour *C12*, 6 DU (8 %) pour *C16*, 7 DU (2 %) pour *CT* et 15 DU (49 %) pour *Ctropo*. Les fortes erreurs sur les colonnes partielles et en particulier sur la colonne troposphérique sont dues aux fortes variabilités incluses dans \mathbf{S}_a .

Erreur sur les paramètres d'entrée

Le second type d'erreur à considérer est l'erreur liée aux incertitudes affectant les paramètres d'entrée du RN. Les sources d'incertitude les plus importantes sont le bruit radiométrique ε sur les mesures \mathbf{y} (luminances) et l'erreur ε_b sur les paramètres du modèle direct non-inversés $\hat{\mathbf{b}}$ (température de surface et profil de température) utilisés en entrée de l'inversion.

Les erreurs sur les résultats de l'inversion entraînées par ces incertitudes sont déduites en appliquant les fonctions de gain \mathbf{G}_y et \mathbf{G}_b , caractérisant la sensibilité de l'algorithme d'inversion aux luminances et aux températures, aux valeurs d'erreur sur les luminances ε et sur les températures d'entrée ε_b respectivement (en supposant que ces erreurs sont suffisamment faibles pour rester dans le cas modérément non-linéaire). Ainsi :

- l'erreur liée à \mathbf{y} est égale à

$$\mathbf{e}_n = \mathbf{G}_y \cdot \varepsilon, \quad (5.25)$$

où \mathbf{G}_y est défini en 5.16, et sa matrice de covariance est égale à

$$\mathbf{S}_n = \mathbf{G}_y \cdot \mathbf{S}_\varepsilon \cdot \mathbf{G}_y^T \quad (5.26)$$

- l'erreur liée à $\hat{\mathbf{b}}$ est égale à

$$\mathbf{e}_b = \mathbf{G}_b \cdot \varepsilon_b, \quad (5.27)$$

où \mathbf{G}_b est défini en 5.17, et sa matrice de covariance est égale à

$$\mathbf{S}_b = \mathbf{G}_b \cdot \mathbf{S}_{\varepsilon_b} \cdot \mathbf{G}_b^T \quad (5.28)$$

avec \mathbf{S}_ε la matrice de covariance du bruit radiométrique et $\mathbf{S}_{\varepsilon_b}$ celle de l'erreur associée aux inversions des températures.

\mathbf{G}_y et \mathbf{G}_b étant déterminés analytiquement, les erreurs associées et leur matrices de covariance peuvent être fournies pour chaque inversion si les erreurs ε et ε_b sont connues ou peuvent être estimées. Ces définitions permettent donc d'associer une précision à chaque inversion réalisée (de manière opérationnelle).

Pour IASI, le bruit radiométrique attendu (<http://smc.cnes.fr/IASI/index.htm>) et la matrice de covariance de l'erreur sur les températures (P. Prunet, communication privée) sont représentés sur la figure 5.14.

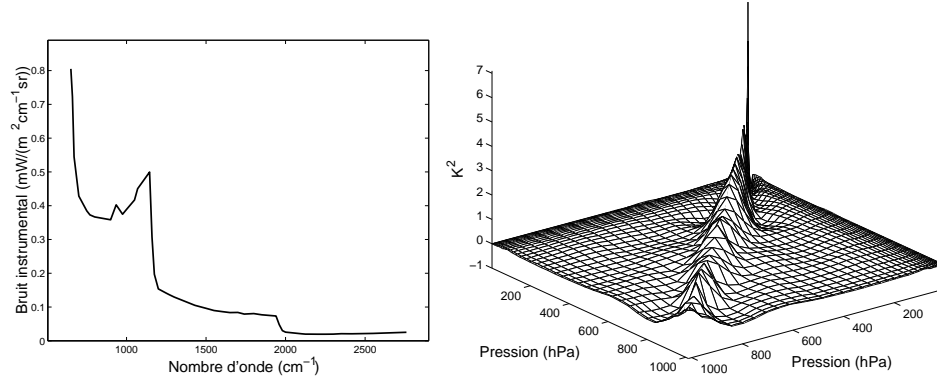


FIG. 5.14 – *Bruit radiométrique attendu pour IASI à une température de référence de 280 K (figure de gauche) et matrice de covariance de l'erreur sur les températures de niveau 2 (figure de droite). Pour les niveaux de pression les plus élevés, l'erreur sur les températures devient relativement importante, avec des valeurs atteignant 10 à 25 K² au-dessus de 2 hPa.*

Le niveau de bruit est d'environ $2.5 \cdot 10^{-8} \text{ W}/(\text{cm}^2\text{cm}^{-1}\text{sr})$ dans la bande de l' O_3 ($\sim 1000 \text{ cm}^{-1}$). Le bruit ε ($m \times 1$) est ainsi simulé pour chaque exemple en multipliant un vecteur de nombres aléatoires (de distribution normale avec $\sigma=1$) par $2.5 \cdot 10^{-8}$ (bruit différent pour chacun des exemples), et la matrice de covariance du bruit \mathbf{S}_ε est représentée par une matrice diagonale aléatoire (bruit blanc) dont la diagonale est ε^2 .

L'incertitude ε_b ($l \times 1$) est simulée en multipliant un vecteur de nombres aléatoires par la racine de la diagonale de la matrice de covariance de l'erreur sur les températures. La corrélation n'est, dans cette première approximation, pas prise en compte. Ainsi, l'erreur sur les températures est estimée à moins de 0.2 K à la surface, à 1 K environ dans les premières couches de l'atmosphère, à 1.4 K autour de 100 hPa et jusqu'à 3 K au-dessus de 1 hPa.

Les distributions des erreurs d'inversion associées aux incertitudes ε et ε_b et calculées sur l'ensemble test (en utilisant les équations 5.25 et 5.27) sont représentées sur les histogrammes des figures 5.15, 5.16, 5.17 et 5.18. Une estimation de leur contribution à l'erreur d'inversion globale est résumée dans le tableau 5.3. Des erreurs aléatoires normales ayant été appliquées aux entrées, les erreurs induites suivent également une loi normale, avec une valeur moyenne très proche de zéro. La déviation standard peut être considérée pour évaluer l'impact global des incertitudes. L'impact le plus important provient de l'incertitude sur les radiances d'entrée et le profil de température, alors que les erreurs associées à la température de surface sont beaucoup plus faibles. Ces résultats s'expliquent en majeure partie par l'amplitude des incertitudes sur les entrées, mais aussi par la sensibilité de l'algorithme d'inversion, et ainsi par la variabilité des quantités mesurées. En effet, même si la sensibilité à la température de surface est importante, l'incertitude qui y est associée est suffisamment faible pour que l'incertitude associée sur les inversions soit très petite. Les incertitudes sur le profil de température et les radiances sont relativement

TAB. 5.3 – Erreurs d'inversion associées à des incertitudes sur les luminances d'entrée (\mathbf{e}_n), sur le profil de température ($\mathbf{e}_{b=T}$) et sur la température de surface ($\mathbf{e}_{b=T_s}$), évaluées sur un ensemble de données test composé de 17000 simulations. Pour chaque variable inversée, la déviation standard des erreurs calculées est indiquée en %. L'incertitude totale résultant des différentes contributions est également précisée (donnée par la déviation standard de $\mathbf{e}_{inputs} = \sqrt{\mathbf{e}_n^2 + \mathbf{e}_{b=T}^2 + \mathbf{e}_{b=T_s}^2}$).

	<i>CT</i>	<i>C6</i>	<i>C12</i>	<i>C16</i>	<i>Ctropo</i>
$\sigma(\mathbf{e}_n)$ (%)	1.5	5.4	7.6	8.3	11.3
$\sigma(\mathbf{e}_{b=T})$ (%)	2.4	6.3	8.7	9.6	2.2
$\sigma(\mathbf{e}_{b=T_s})$ (%)	0.2	0.4	0.6	0.5	18.7
$\sigma(\mathbf{e}_{inputs})$ (%)	1.7	4.7	6.4	7.2	13.7

plus importantes. Comme les différentes variables inversées sont aussi très sensibles à ces paramètres, l'impact sera plus élevé, et d'autant plus important que la variabilité de la grandeur inversée est importante (plus importante en valeur absolue pour la colonne totale qui est plus élevée, que pour les colonnes partielles plus faibles).

Des compensations entre les différentes contributions peuvent se produire. Nous avons donc évalué l'erreur globale en calculant la somme quadratique des différentes contributions.

5.5.3 Tests de cohérence interne

Les paragraphes précédents étaient centrés sur l'estimation de l'erreur d'inversion pour la restitution des colonnes d'O₃. Les mêmes considérations s'appliquent à la restitution des deux luminances test ($\hat{r}(1)$ et $\hat{r}(2)$) : de faibles performances sont obtenues pour de faibles rapports signal/bruit ou pour des températures d'entrée de faible qualité. En effet, une forte incertitude sur les spectres mesurés ou sur l'estimation des températures peut engendrer une incohérence entre luminances et températures d'entrée et perturber le RN.

En pratique, l'algorithme peut rencontrer des situations qui ne sont pas cohérentes avec l'apprentissage du réseau. Ce sera en particulier le cas pour des émissivités de surface trop éloignées de la valeur moyenne utilisée pour les simulations de la base d'apprentissage, ou pour des mesures de mauvaise qualité (problèmes de calibration par exemple). D'autre part, lorsque différents instruments sont utilisés pour les mesures de luminance et les estimations de température, des incohérences peuvent se produire.

Pour les luminances test, la valeur réelle est représentée par la mesure de l'instrument au nombre d'onde correspondant, et l'erreur d'inversion est donc connue de manière précise. Elle peut être utilisée pour mettre en évidence (et éventuellement filtrer) les inversions les moins fiables. Le but n'est cependant pas ici de modéliser le problème direct et il est bon de garder à l'esprit le fait que l'erreur sur les luminances de sortie n'est pas toujours corrélée aux erreurs sur les colonnes d'O₃.

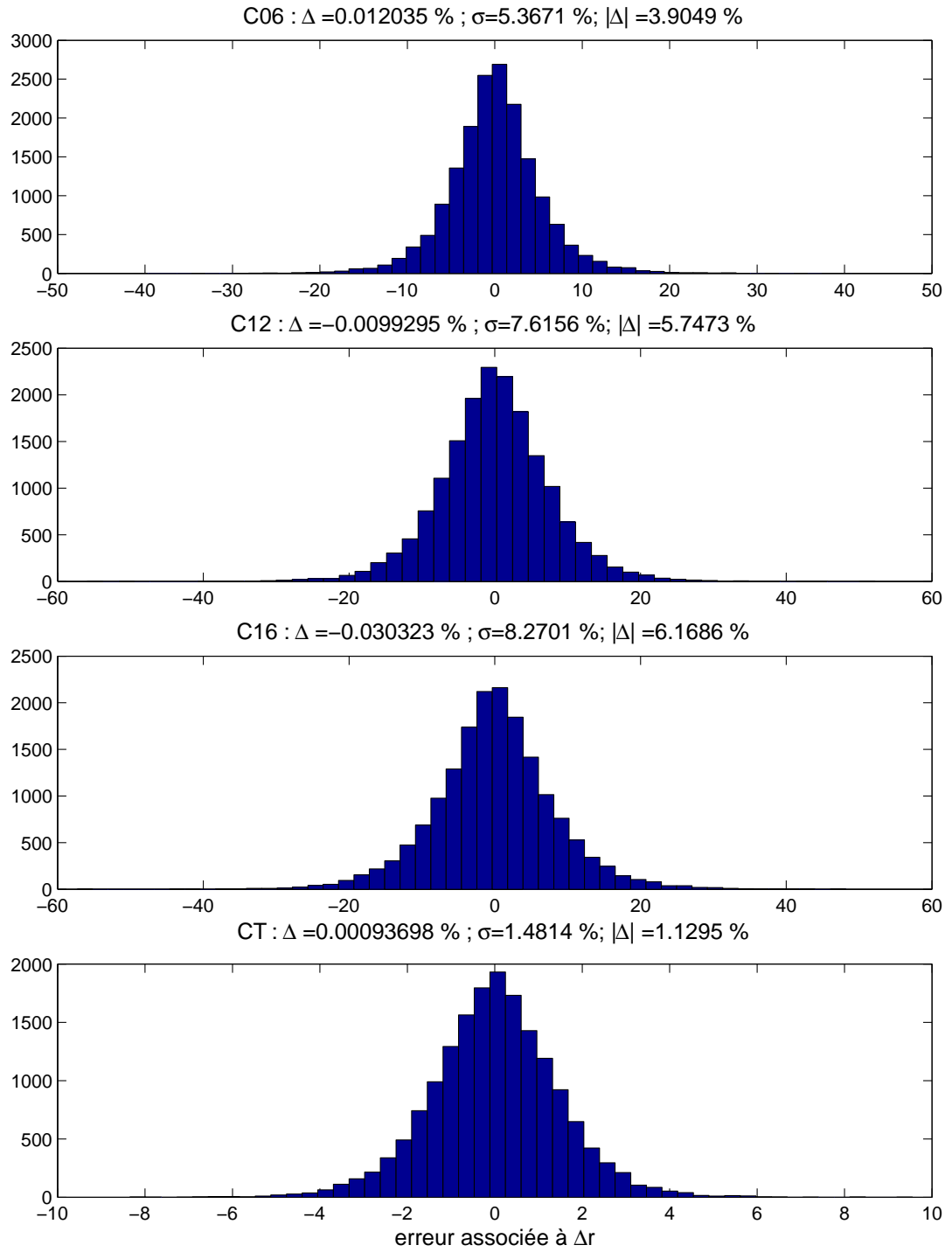


FIG. 5.15 – Erreur sur l'inversion des colonnes C6, C12, C16 et CT associée à un bruit sur les luminances d'entrée ($\Delta \mathbf{r}$), calculée pour les exemples de l'ensemble de données test (17000 exemples). La valeur moyenne (Δ), la valeur moyenne absolue ($|\Delta|$) et la déviation standard σ de l'erreur relative sont indiquées au-dessus de chaque distribution.

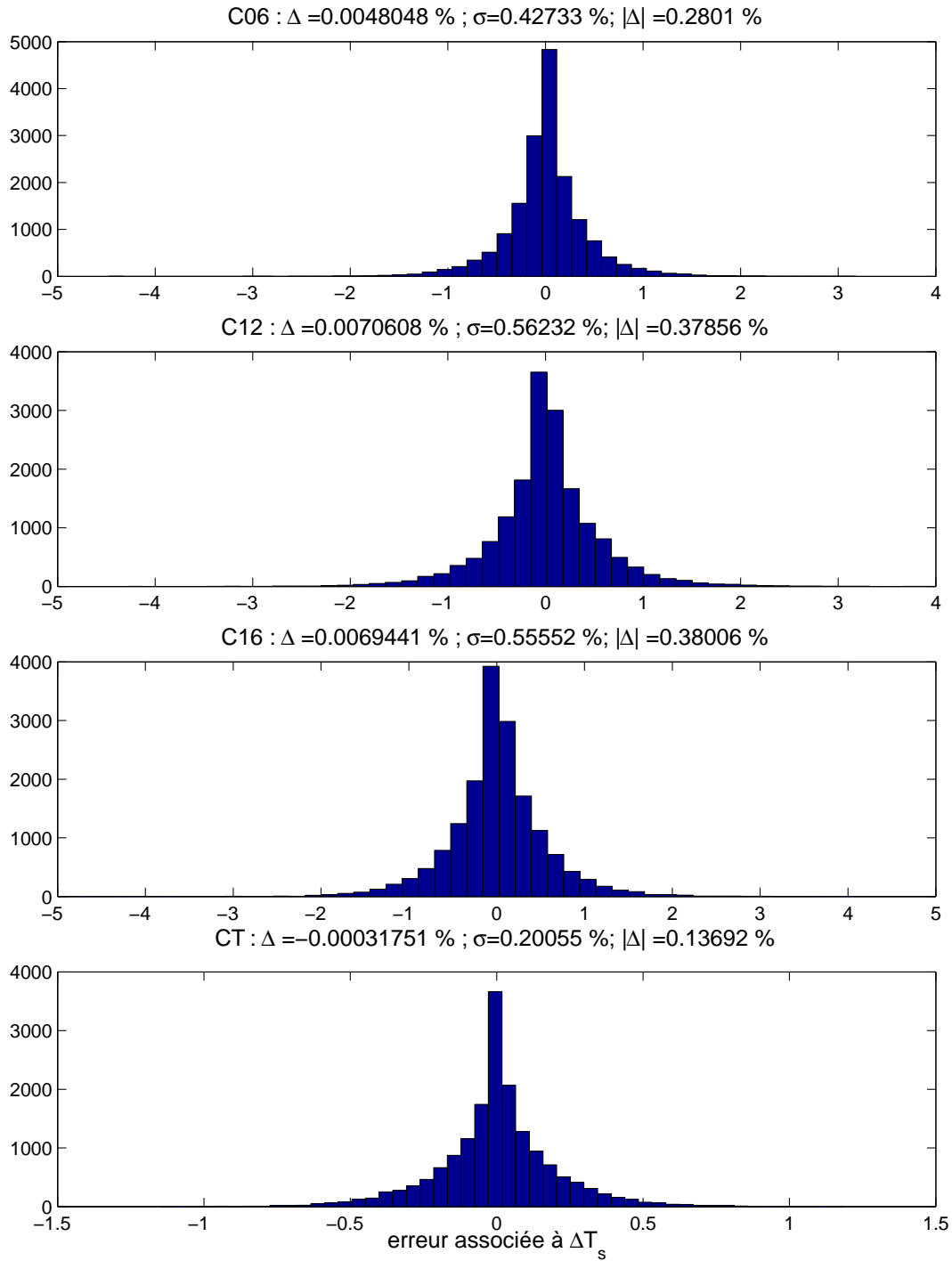


FIG. 5.16 – Même chose que la figure 5.15 pour l'erreur associée à une incertitude sur les températures de surface (ΔT_s).

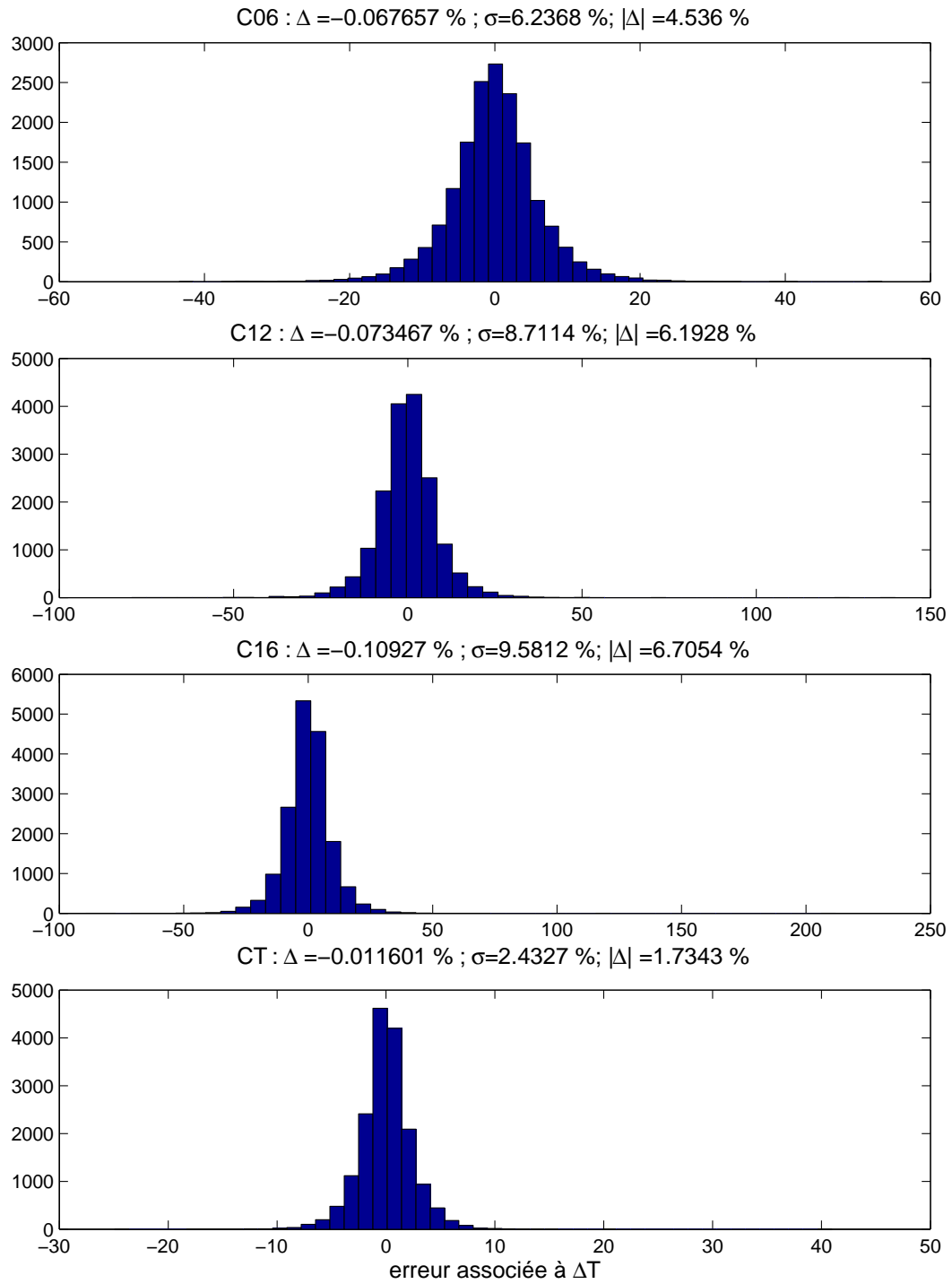


FIG. 5.17 – Même chose que la figure 5.15 pour l'erreur associée à une incertitude sur le profil de température (ΔT).

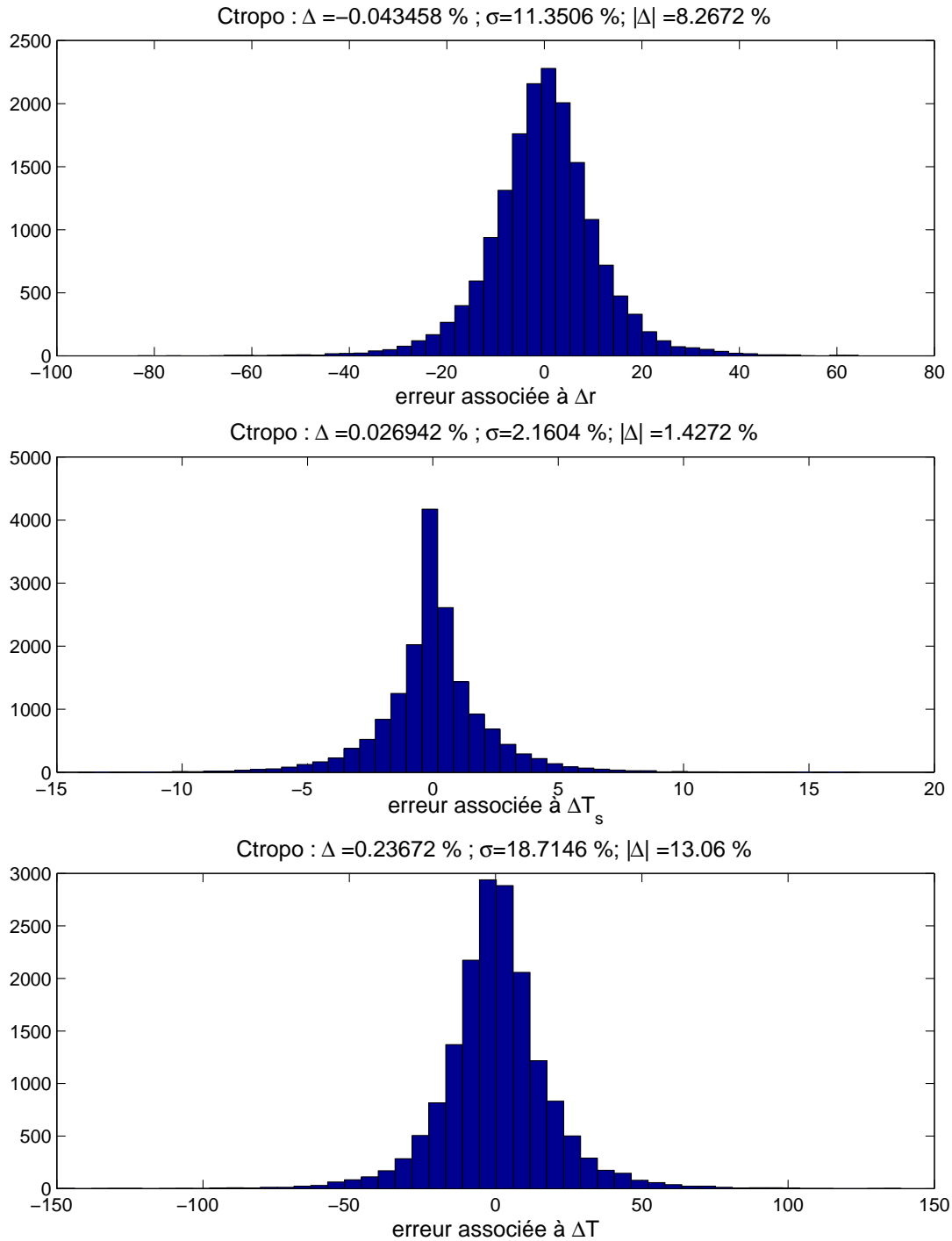


FIG. 5.18 – Erreur sur l'inversion de C_{tropo} associée aux différentes sources d'incertitude : bruit sur les luminances d'entrée (Δr), erreur sur la température de surface (ΔT_s) et sur le profil de température (ΔT), calculé pour les exemples de l'ensemble de données test (17000 exemples). La valeur moyenne (Δ), la valeur moyenne absolue ($|\Delta|$) et la déviation standard σ de l'erreur relative sont indiquées au-dessus de chaque distribution.

5.6 Classification de profils d'ozone

La comparaison — ou l'utilisation couplée — des données inversées avec d'autres observations ou avec des sorties de modèles nécessite une bonne connaissance de la précision et de la sensibilité du système d'observation [Rodgers, 2000; Rodgers and Connor, 2003].

L'équation 5.14 peut être utilisée afin d'estimer, à partir d'un profil d'ozone modélisé ou mesuré par un autre instrument, des colonnes d'ozone telles qu'elles seraient observées par l'instrument (c'est-à-dire inversées par notre algorithme à partir des mesures spatiales).

Cette approximation nécessite la connaissance de la matrice \mathbf{A} de sensibilité du système d'observation, mais aussi de l'information *a priori* \mathbf{x}_a utilisée pour l'inversion. Comme nous l'avons déjà précisé, la connaissance *a priori* est implicite dans le cas d'une inversion par réseaux de neurones : elle est fournie de manière globale au RN au cours de la phase d'apprentissage. Nous n'avons donc pas accès à l'information utilisée pour une inversion spécifique. Une méthode consiste à considérer \mathbf{S}_a égal à la matrice de covariance globale de l'ensemble d'apprentissage, comme nous l'avons fait précédemment pour les études de sensibilité du système d'observation (partie 5.5.1). Elle néglige cependant les capacités du RN à se placer, au cours de la phase opérationnelle, dans le cas appris le plus proche du cas réel considéré.

Nous avons ici choisi de constituer un ensemble de cas représentatifs à partir des exemples de l'ensemble d'apprentissage. Dans ce but, une méthode de classification automatique a été utilisée [Clerbaux et al., 1998; Hadji-Lazaro, 1999] afin de regrouper les exemples de la base d'apprentissage en différentes classes représentatives. Pour rester cohérents avec la méthode de résolution du RN, un critère de classification proche de l'apprentissage a été choisi : la classification est réalisée en utilisant les entrées (luminances \mathbf{y} et températures $\hat{\mathbf{b}}$) et les cibles (colonnes d'ozone \mathbf{c}) de l'apprentissage. L'attribution d'une classe à une situation donnée ne sera en revanche basée que sur les entrées du problème inverse. Cette méthode comporte évidemment beaucoup moins de degrés de liberté que la fonction de transfert globale du RN mais permet d'effectuer des premiers tests sur la possibilité d'utiliser une information *a priori* explicite pour simuler le comportement du RN.

Après une rapide description de la méthode de classification automatique, les résultats de la classification sont présentés. Les Jacobiens caractérisant la sensibilité des spectres à la distribution verticale de l'ozone sont ensuite calculés pour chaque classe. Enfin, une méthode d'attribution des classes est proposée.

5.6.1 Méthode de classification

Les méthodes de classification automatique permettent de grouper des individus ou des objets décrits par un certain nombre de variables. Tout comme dans les travaux de Clerbaux et al. [1998] et Hadji-Lazaro [1999], un algorithme de classification hiérarchique ascendant (ou agglomératif), qui procède à la classification par agrégation successive des objets deux à deux, a été utilisé en se basant sur la technique d'agrégation "selon la variance" : la classification est optimisée à chaque étape selon un critère non arbitraire lié à des calculs d'inertie [Benzécri et al., 1973; Saporta, 1978; Lebart et al., 1982]. À chaque itération, un élément est associé à une classe telle que le moment d'inertie (ou la variance) intérieur de la nouvelle classe soit minimal (ou que le moment d'inertie entre les classes soit maximal).

Si ω_i représente les composantes utilisés pour la classification (critères de classification) associés à chaque élément i de la base de données D à classifier, comprenant N exemples, et si $p(i)$ est le poids associé à cet élément, alors l'inertie totale du nuage de points D est donné par :

$$M(D) = \sum_{i=1}^N p(i) (\omega_i - \mathbf{G}).(\omega_i - \mathbf{G})^T \quad (5.29)$$

où \mathbf{G} est le barycentre du nuage (ou centre de gravité général) :

$$\mathbf{G} = \frac{\sum_{i=1}^N p(i) \omega_i}{P}, \quad P = \sum_{i=1}^N p(i) \quad (5.30)$$

avec P le poids total du nuage de points.

S'il existe une partition en Q classes de D , le centre de gravité de la $q^{\text{ème}}$ classe est tel que :

$$\mathbf{G}_q = \frac{\sum_{i \in q} p(i) \omega_i}{P_q}, \quad P_q = \sum_{i \in q} p(i) \quad (5.31)$$

Le taux d'inertie ou taux de variance dont rend compte la partition Q est alors [Benzécri et al., 1973] :

$$\tau = \frac{M(Q)}{M(D)} \quad (5.32)$$

La partition Q optimale est celle pour laquelle le rapport τ est le plus grand (inertie interclasse maximale). Le calcul du minimum d'inertie intra-classe, critère équivalent, est cependant plus simple à mettre en œuvre. C'est cette méthode que nous avons choisie, en utilisant un algorithme de classification ascendante.

Initialement, une classe est associée à chaque exemple i de D , de poids $p(i) = 1$. Le moment d'inertie d'un couple de classes (i, j) est calculé de la manière suivante :

$$M(i, j) = p(i)(\omega_i - \mathbf{G}_{i,j}).(\omega_i - \mathbf{G}_{i,j})^T + p(j)(\omega_j - \mathbf{G}_{i,j}).(\omega_j - \mathbf{G}_{i,j})^T \quad (5.33)$$

avec

$$\mathbf{G}_{i,j} = \frac{p(i) \omega_i + p(j) \omega_j}{p(i) + p(j)} \quad (5.34)$$

Les classes i et j pour lesquels $M(i, j)$ atteint son minimum sont regroupés dans une même classe dont le poids est égal à $p(i) + p(j)$, et le centre de gravité à $\mathbf{G}_{i,j}$. Le minimum d'inertie intra-classe est à nouveau recherché sur la nouvelle partition afin de regrouper deux autres classes. Ce processus est poursuivi jusqu'à ce que le nombre de classes atteigne la valeur fixée *a priori*. La validité de la classification Q obtenue est testée grâce au taux de variance τ de l'ensemble D représenté par Q . Le seuil minimum de variance est ici fixé à $\tau = 89\%$ [Hadj-Lazaro, 1999].

5.6.2 Résultats de la classification

Pour réaliser une classification aussi proche que possible du comportement du RN, l'information fournie au cours de la phase d'apprentissage est utilisée comme critère de classification, c'est-à-dire les luminances sélectionnées pour l'ozone, les températures associées, ainsi que les colonnes d'O₃ cibles. Afin d'accélérer la classification, seules une

luminance sur dix a été utilisée, l'utilisation de toutes les luminances ne changeant pas significativement la classification obtenue. Ainsi

$$\omega = \{y', \hat{b}, c\} \quad , \quad y' = y(1 : 10 : 140) \quad (5.35)$$

L'utilisation de tous les exemples de la base d'apprentissage permettrait d'obtenir une classification globale, valable quelle que soit la période de l'année considérée. Un grand nombre de classes est cependant nécessaire afin d'atteindre le seuil $\tau=89\%$ de variance exprimée (plus d'une centaine de classes).

Nous avons choisi de réaliser une classification préliminaire sur les exemples du mois d'avril seul (1^{er} avril) afin de tester la méthode. 30 classes permettent d'exprimer plus de 89.7 % de la variance. La répartition des classes est représentée sur la carte de la figure 5.19. Celle-ci est nettement moins latitudinale que la classification en 4 classes réalisée par *Clerbaux et al.* [1998] et *Hadji-Lazaro* [1999]. Les discontinuités apparentes au niveau des tropiques sont cependant trompeuses. En effet, en regardant les profils moyens d'ozone associés à ces classes, représentés sur la figure 5.20 (la partie troposphérique de ces profils est représentée sur la figure 5.21), nous pouvons remarquer que les classes 6, 7, 8 et 24, 25 correspondent à des profils typiques des tropiques, avec une tropopause autour de 16 km d'altitude, très similaires les uns aux autres.

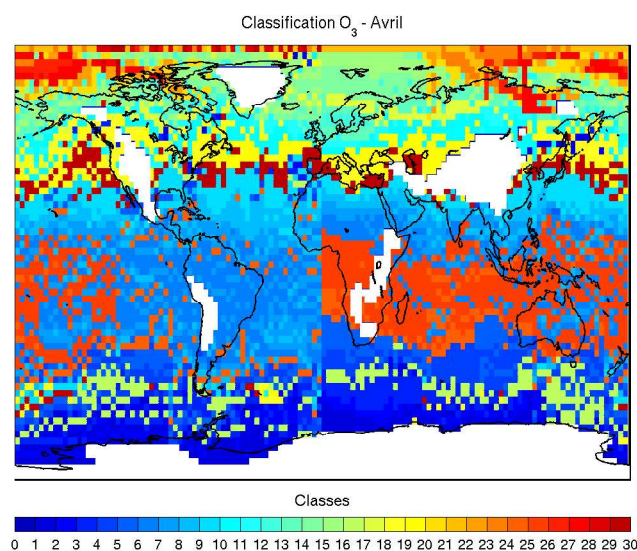


FIG. 5.19 – Distribution des 30 classes issues de la classification des exemples du 1^{er} avril. Les profils d' O_3 correspondants sont présentés sur les figures 5.20 et 5.21.

Différentes classes peuvent être constituées de profils de formes très proches. Les 30 classes sont cependant conservées afin de dépasser le seuil de 89 % de variance exprimée. Pour diminuer le nombre de classes en gardant le même seuil, il faudrait diminuer le nombre de critères de classification, ce qui nous éloignerait du comportement du RN. Un regroupement “manuel” des classes pourrait être réalisé en se basant sur des considérations géophysiques. Nous avons conservé la classification automatique pour cette étude, qui reste préliminaire.

À partir de cette classification, un ensemble de 30 profils d' O_3 , de température et de pression, correspondants aux profils moyens pour chaque classe, est constitué. Cet

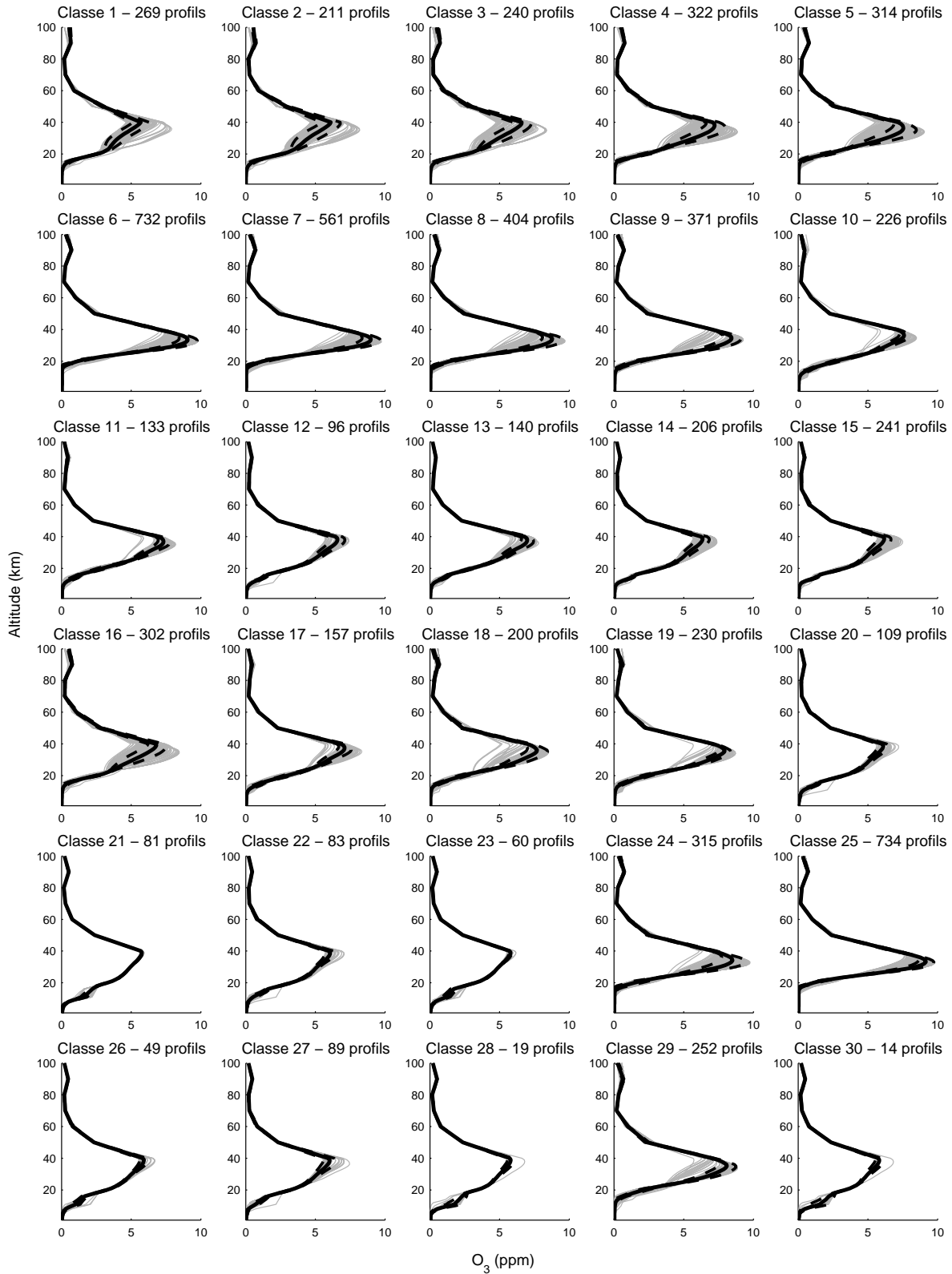


FIG. 5.20 – Profils moyens de rapport de mélange d'O₃ issus de la classification des exemples du 1^{er} avril (\pm leur déviation standard en pointillés). Les profils utilisés pour constituer chaque classe sont indiqués en gris.

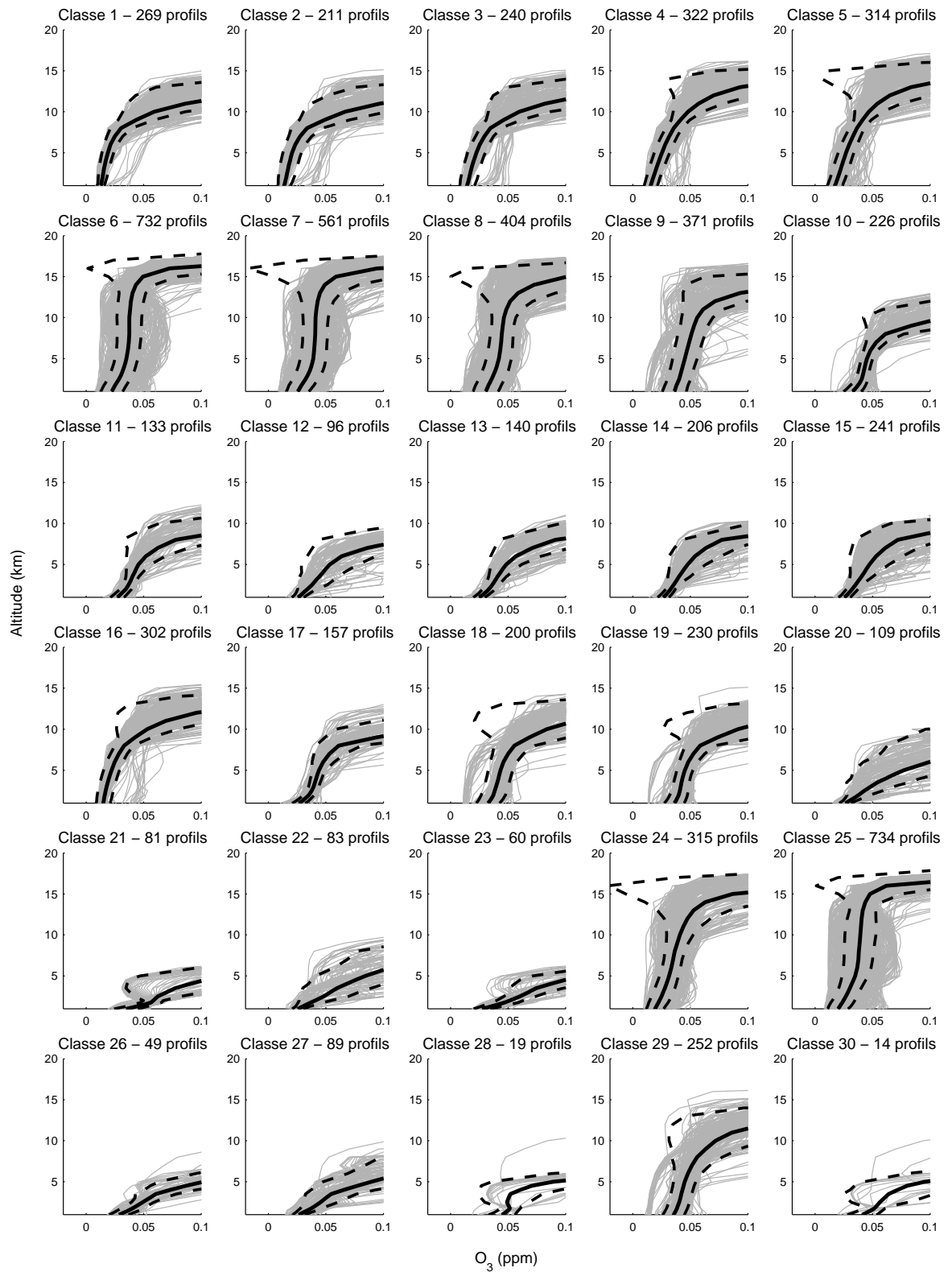


FIG. 5.21 – Même chose que la figure 5.20 mais avec un zoom sur la partie troposphérique des profils.

ensemble sera utilisé afin d'approcher l'information *a priori* prise en compte par le RN pour l'inversion.

5.6.3 Sensibilité IASI correspondant aux différentes classes

Pour chacune des classes, c'est-à-dire pour chaque cas de référence classifié, la matrice \mathbf{K}_x des Jacobiens caractérisant la sensibilité des spectres IASI est calculée. La méthode de calcul de cette matrice est exposée dans la partie 4.1. Elle repose sur une méthode de perturbation des profils d'ozone utilisés pour la simulation des spectres (mesures de type IASI simulées) : $\mathbf{K}_x \sim \Delta \mathbf{y} / \Delta \mathbf{x}$. Pour chacune des classes, les profils de pression, de température et d'ozone moyens sont utilisés en entrée du code de transfert radiatif (LBLRTM) afin de calculer le spectre de référence. Le profil d'ozone est ensuite perturbé de 10 % niveau par niveau. Nous noterons que le profil d'ozone est ici entré en termes de concentration.

Les Jacobiens obtenus sont représentés sur la figure 5.22 dans le cas des luminances absolues, et sur la figure 5.23 dans le cas des luminances relatives, soustraites de la ligne de base du corps gris d'émissivité 0.9813 (exemple du canal à 1020 cm^{-1}). Leur forme générale est similaire à celle des Jacobiens calculés pour l'atmosphère standard US 1976 pour les études de sensibilité du chapitre 4 (figure 4.2) : le pic de sensibilité à la concentration d'ozone est atteint autour de 8-12 km d'altitude pour toutes les classes considérées. Leur intensité dépend cependant fortement du profil : plus la quantité d'ozone est importante et plus le spectre y est sensible. Si des luminances relatives sont considérées, les Jacobiens deviennent positifs.

L'association d'une classe à la situation réelle traitée permet d'estimer la sensibilité du système d'observation total (instrument et algorithme) à la distribution verticale de l'ozone, fournie par les noyaux $\mathbf{A} = \mathbf{G}_y \mathbf{K}_x$. Pour ce calcul, les Jacobiens pour des luminances relatives doivent être utilisés puisque des luminances relatives sont considérées en entrée du RN. Les fonctions de gain \mathbf{G}_y caractérisant la sensibilité de l'algorithme aux paramètres d'entrée sont calculées par dérivation de la fonction de transfert globale du RN pour chaque situation inversée. La classification n'est donc pas nécessaire à son calcul.

Comme nous l'avons précisé, le noyau peut être considéré comme un "opérateur colonne". Tel qu'il est calculé ici, il doit être appliqué au profil de concentration d'ozone (molécules/cm³) afin d'obtenir une colonne intégrée (molécules/cm²). Afin de s'affranchir des conditions atmosphériques de fond, il est cependant courant d'appliquer le noyau au profil de rapport de mélange d'ozone (ppm). Le noyau calculé précédemment doit donc être multiplié par la densité de l'air à chaque niveau vertical afin de convertir le profil de rapport de mélange (ppm) en un profil de concentration (molécules/cm³) avant de l'intégrer. Pour rester cohérent avec les simulations utilisées pour le calcul des Jacobiens, la densité de l'air issue de la classification (un profil par classe) est utilisée.

5.6.4 Attribution d'une classe

En pratique, l'attribution d'une classe à une situation i donnée est réalisée en n'utilisant que les critères correspondants aux entrées du problème, c'est-à-dire les luminances et les températures, afin de ne pas faire intervenir les inversions à ce niveau :

$$\omega' = \{\mathbf{y}', \hat{\mathbf{b}}\} \quad (5.36)$$

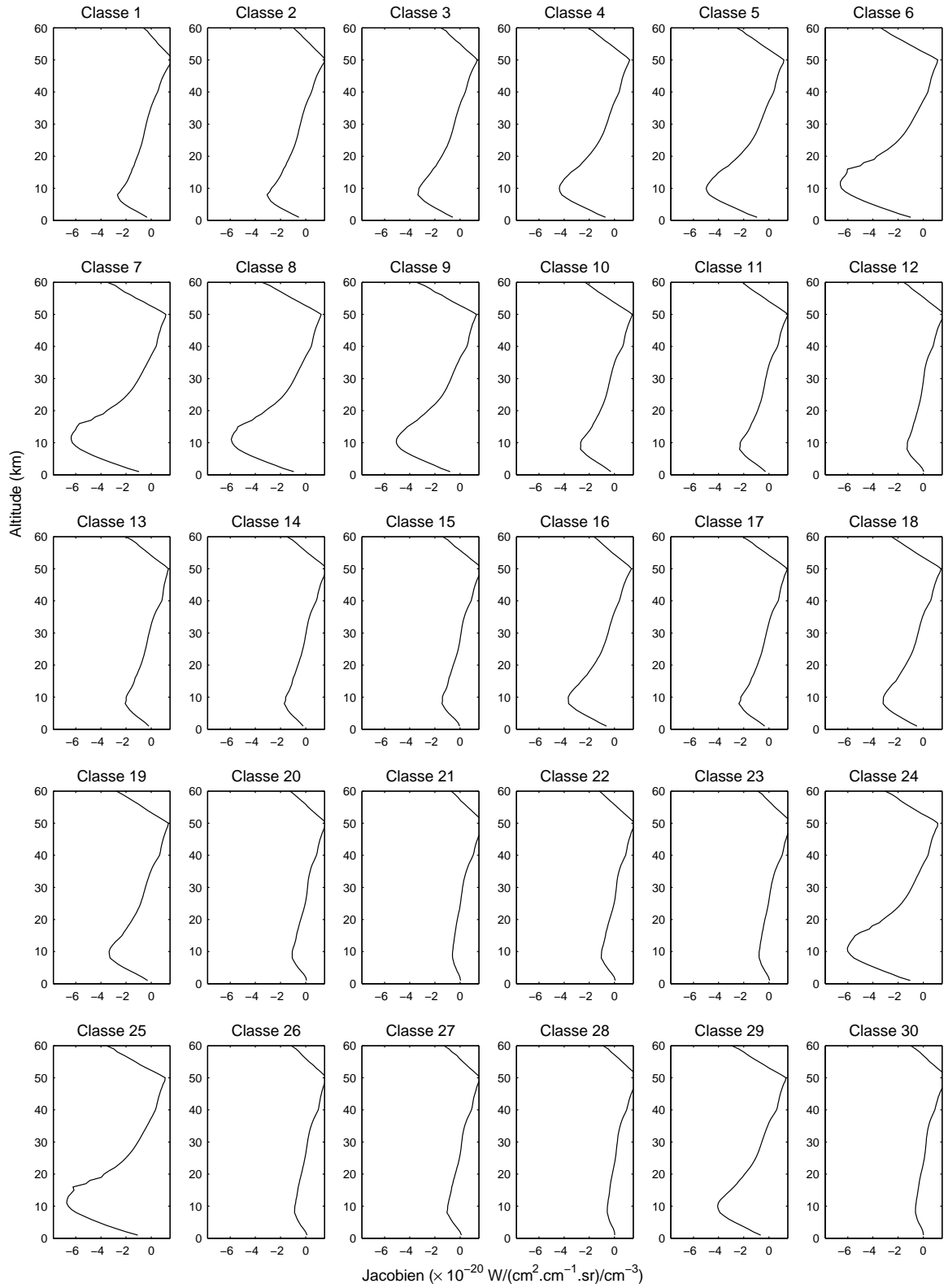


FIG. 5.22 – *Jacobiens K (calculés en fonction de la concentration d’ozone) pour le canal à 1020 cm^{-1} associés aux 30 classes constituées à partir des exemples du 1^{er} avril.*

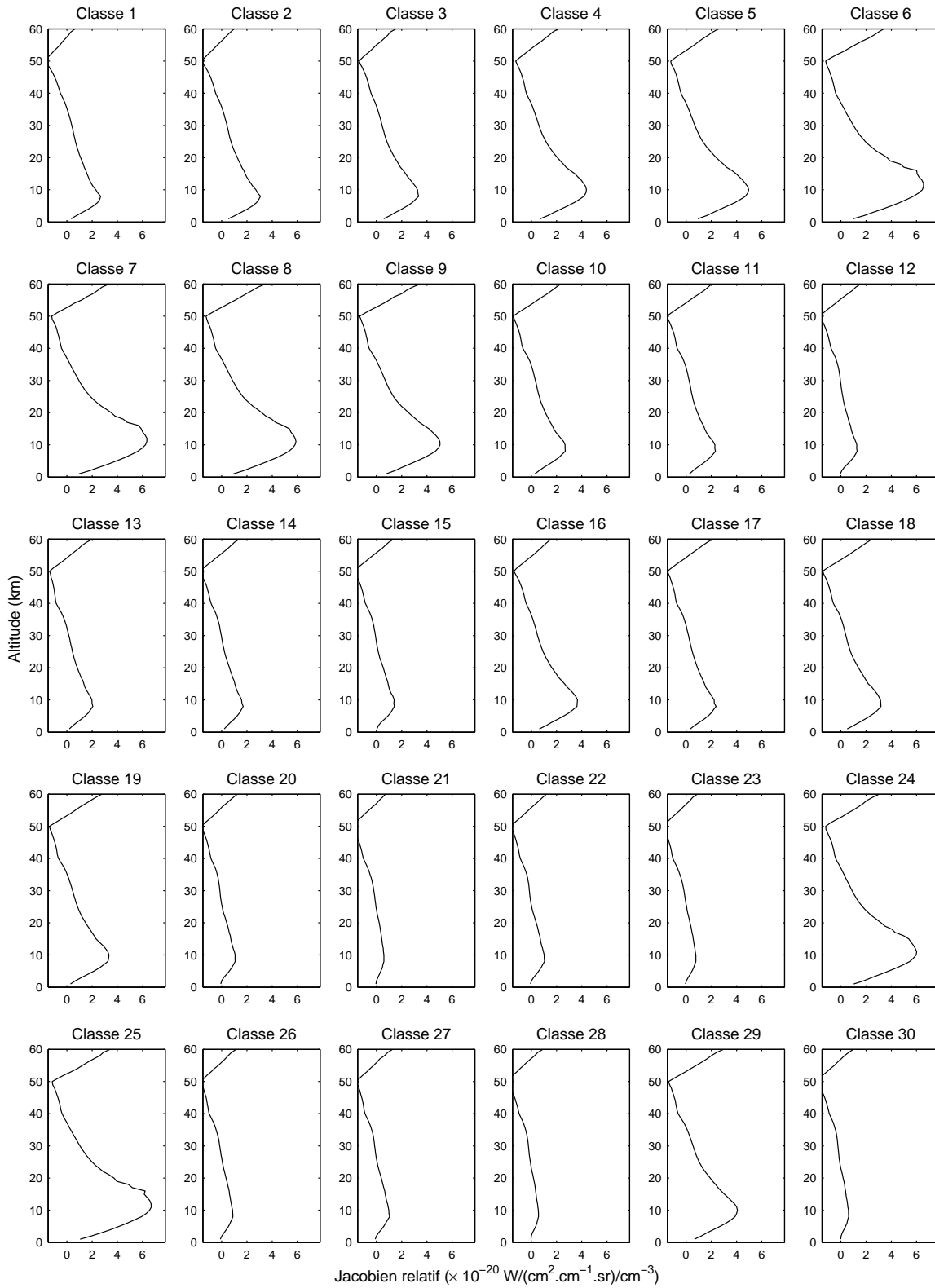


FIG. 5.23 – Même chose que la figure 5.22 mais pour les luminances relatives.

Pour chaque classe $q \in Q$ de poids $p(q)$, le moment d'inertie du couple (i, q) est calculé avec $p(i) = 1$. La classe choisie est celle pour laquelle $M(i, q)$ est le plus faible.

Ainsi, à chaque situation réelle inversée, un cas de référence connu pourra être associé. Nous considérerons que ce cas est alors une bonne représentation de l'information *a priori* utilisée par le RN pour estimer les colonnes d'O₃. Un profil d'O₃ *a priori* \mathbf{x}_a pourra donc être associé aux colonnes inversées, avec une matrice de covariance \mathbf{S}_a et une matrice de Jacobiens \mathbf{K}_x associés. Ces matrices permettent ensuite d'évaluer le noyau \mathbf{A} et l'erreur de lissage associés à chaque inversion.

Ainsi, toutes les informations nécessaires à l'interprétation des mesures peuvent être fournies : sensibilité, précision et incertitude.

5.7 Conclusions

Les techniques des RN nous ont donc permis de développer un algorithme pour modéliser une fonction de transfert globale reliant les mesures IASI aux quantités d'O₃. L'inversion de plusieurs colonnes partielles d'O₃ avec une bonne performance fournit une information sur la quantité totale et la quantité troposphérique d'O₃.

Même si la sensibilité limitée de l'instrument aux premières couches de l'atmosphère et à la haute stratosphère ainsi que la difficulté de l'algorithme à découpler totalement les couches partielles augmentent l'incertitude sur les résultats, l'erreur d'inversion est estimée à moins de 20 % pour une colonne troposphérique et 5 % pour une colonne totale. Ces performances sont tout à fait satisfaisantes compte tenu de la variabilité de ces quantités. L'inversion de l'O₃ sur des colonnes partielles entre des altitudes fixes (par exemple entre la surface et 6, 12 ou 16 km d'altitude) permet de diminuer l'erreur d'inversion de l'O₃ dans les basses couches de l'atmosphère, bien que l'erreur ne semble pas descendre au-dessous de environ 3–4 DU pour les cas moyens, correctement appris. La difficulté de réalisation d'une base de données réaliste et homogène limite les performances de l'algorithme. Les inversions des cas les moins bien représentés dans la base de données sont moins fiables.

En pratique, les performances sont également limitées par les incertitudes sur les luminances mesurées et sur les températures correspondantes entrées au RN.

Les cas les plus extrêmes (en termes de quantités d'O₃, de température ou d'émissivité de surface par exemple) ainsi que les mesures incohérentes ou de mauvaise qualité (faible rapport signal/bruit) pourront être mis en évidence, et éventuellement filtrés, grâce aux luminances test restituées.

La caractérisation des inversions sur un ensemble d'exemples représentatifs et la connaissance de la précision associée à chaque inversion permet une utilisation fiable des mesures dans les modèles numériques, ou leur comparaison à d'autres mesures indépendantes. Dans le cas des RN, l'estimation exacte des caractéristiques de l'inversion est cependant délicate. Il est en effet très difficile d'évaluer l'information *a priori* utilisée pour une inversion donnée et la manière dont celle-ci est traitée. La connaissance acquise au cours de l'apprentissage est en effet utilisée de manière globale, même pour les couches de l'atmosphère auxquelles les spectres mesurés depuis l'espace présentent une bonne sensibilité.

Une première validation de la méthode est présentée dans le chapitre suivant (chapitre 6).

Chapitre 6

Validation sur l'inversion de spectres réels

Le travail décrit jusqu'à présent utilise des observations IASI simulées. La construction d'un ensemble de simulations représentatives des situations que l'instrument devra traiter en mode opérationnel, calculées en couplant un code de transfert radiatif aux profils atmosphériques issus du modèle troposphérique MOZART (raccordés à des climatologies au-dessus de la tropopause), a permis le développement d'un algorithme global d'inversion des concentrations d'ozone. Le même type de mesures simulées a été utilisé pour l'analyse des performances de l'algorithme et a permis l'évaluation de l'erreur d'inversion. L'erreur estimée représente donc une erreur associée uniquement à la méthode d'inversion, et non à la qualité physique des simulations utilisées.

Bien que les observations simulées soient indispensables au développement des méthodes d'inversion et à la caractérisation des mesures, l'évaluation des performances sur ces simulations ne constitue pas une validation complète de la méthode. En effet, les cas simulés sont des cas idéalisés, pour lesquels tous les paramètres sont maîtrisés, ce qui ne sera évidemment pas le cas des mesures réelles qui devront être traitées par l'algorithme. Il convient donc de tester les développements sur des observations réelles afin, dans un premier temps, de confronter l'algorithme à des problèmes tels que la présence de nuages ou d'éventuels dysfonctionnements instrumentaux, puis d'évaluer la qualité des inversions en les comparant à des mesures indépendantes. La comparaison permet d'estimer la validité des approximations faites au cours du développement, par l'utilisation des modèles en particulier.

Nous disposons pour cela d'un ensemble d'observations comprenant d'une part des spectres de type IASI et d'autre part des mesures d'O₃ effectuées par des instruments indépendants.

Nous présentons, dans ce chapitre, l'application de l'algorithme aux mesures satellitaires IMG/ADEOS, ainsi que la validation des inversions en utilisant les mesures de sondes d'ozone et les mesures satellitaires TOMS/ADEOS. La possibilité d'appliquer les développements aux mesures ballon LPMA/IASI est ensuite présentée.

6.1 Application aux mesures spatiales IMG/ADEOS

Comme décrit dans la partie 3.3.2, les spectres mesurés par l'instrument IMG [Kobayashi *et al.*, 1999a; Kobayashi *et al.*, 1999b] peuvent être adaptés aux caractéristiques

de IASI afin d'obtenir des spectres tels qu'ils seraient mesurés par IASI. Les spectres IMG sont pour cela rééchantillonnés et convolués par la fonction d'appareil IASI. Les 8 mois de mesures IMG constituent ainsi un outil très utile à la validation des développements puisqu'ils permettent de confronter la méthode à des mesures en conditions réelles, soumises à d'éventuels problèmes instrumentaux et au bruit radiométrique.

Un travail de calibration des spectres mesurés a été mené par l'équipe IMG tout au long de la mission afin de corriger différentes erreurs, notamment liées à des problèmes d'alignement des miroirs d'acquisition. Nous avons ici limité notre étude aux périodes de meilleure qualité, pour lesquelles le plus grand nombre de spectres a été conservé : 26-28 décembre 1996 ; 25-28 janvier 1997 ; 1-10 avril 1997 ; 16-19 juin 1997.

Les paramètres nécessaires à l'inversion sont les luminances correspondant à de fortes signatures d'O₃ d'une part et la température de surface et le profil atmosphérique de température associés d'autre part. Parmi les luminances mesurées, les canaux sélectionnés pour l'inversion de l'ozone (tableau 4.1, chapitre 4) sont isolés. Les luminances correspondantes constituent les luminances d'entrée de l'algorithme d'inversion, mise à part la luminance à 1034.75 cm⁻¹ qui est utilisée comme luminance test en complément de la luminance à 976.75 cm⁻¹.

Pour IASI, les températures de surface et les profils de température seront fournis de manière opérationnelle (avec l'erreur associée). Cependant, les températures de niveau 2 fournies lors de la mission IMG sont peu fiables [Hadjilazaro, 1999]. Leur inversion n'étant pas l'objet de notre étude, nous avons choisi d'utiliser les profils de température fournis par le modèle du Centre Européen ECMWF — champs analysés fournis toutes les 6 heures [Gibson *et al.*, 1997] —, co-localisés aux observations IMG grâce à l'outil Arletty du centre de données de l'IPSL¹.

Après une description rapide des températures d'entrée utilisées, qui auront un impact important sur la qualité des inversions, nous allons présenter les différents filtres de qualité mis en œuvre. Le but du premier filtre est de sélectionner les cas qui ne sont pas affectés par la présence de nuages (filtre nuages). Le second a pour but de sélectionner les cas qui seront le plus correctement traités par l'algorithme d'inversion développé (test de cohérence). Enfin, les inversions de l'ozone IMG seront présentées, ainsi que l'analyse de l'erreur d'inversion associée.

6.1.1 Températures associées à IMG

Bien que la température de surface (T_s) soit fournie par ECMWF, nous avons choisi de la déduire des spectres IMG afin de rester le plus cohérent possible avec les conditions de mesure.

Dans le domaine de l'infrarouge thermique, T_s peut aisément être déduite des spectres en utilisant la relation du corps gris de Planck (équations 2.1 et 2.2) dans une fenêtre atmosphérique, c'est-à-dire pour une luminance L_0 mesurée à un canal spectral ν_0 ne comportant que la signature de l'émission de la surface de la Terre :

$$T_s = \frac{h c \nu_0 / k}{\ln \left(\frac{2 \epsilon_s h c^2 \nu_0^3}{L_0} + 1 \right)} \quad (6.1)$$

¹<http://dataipsl.ipsl.jussieu.fr/>

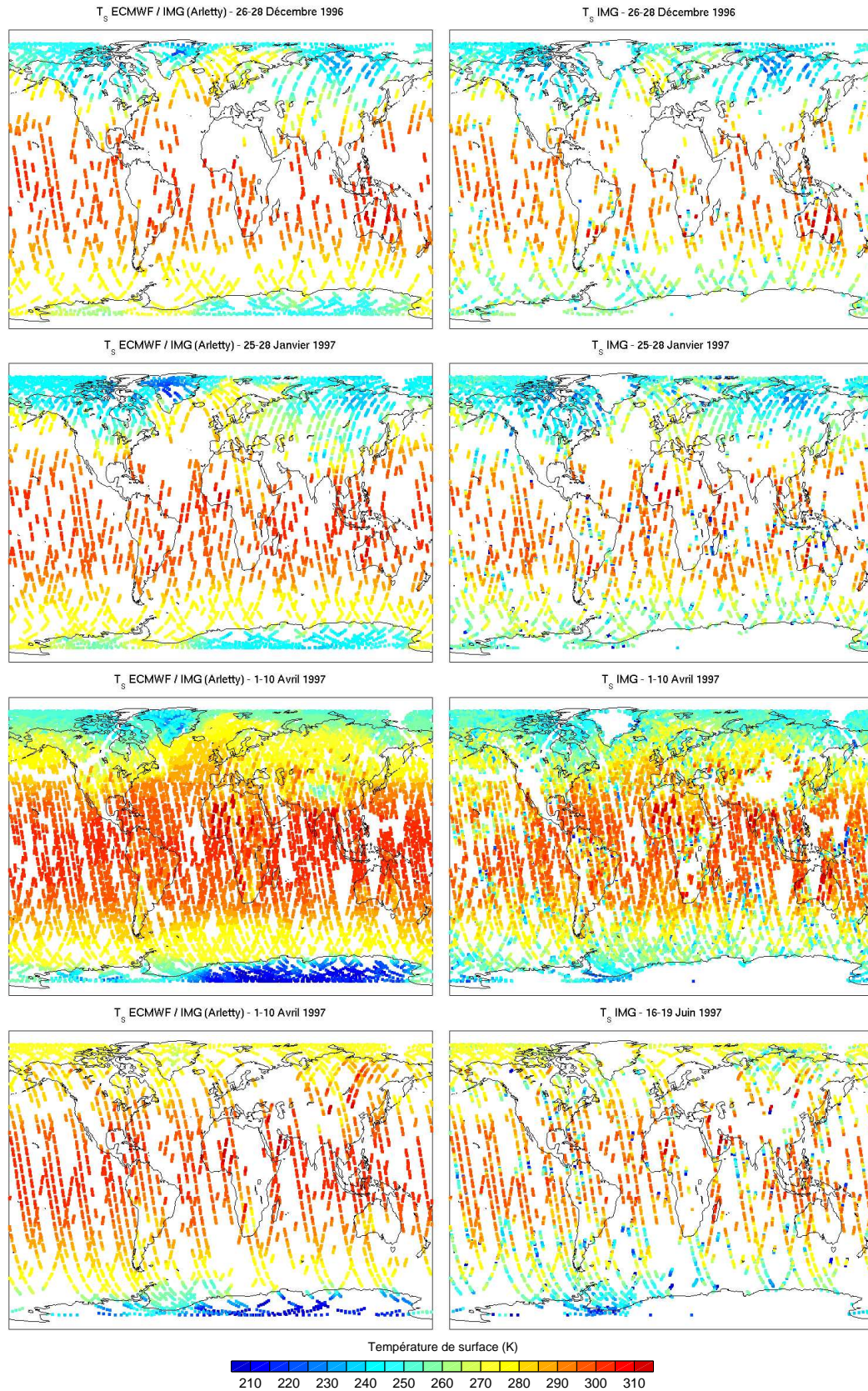


FIG. 6.1 – Distributions des températures de surface fournies par ECMWF pour les périodes étudiées, co-localisées aux mesures IMG (Arletty) (figures de gauche), et températures de surface déduites des spectres IMG (figures de droite).

avec h la constante de Planck, c la vitesse de la lumière dans le vide, k la constante de Boltzmann et ϵ_s l'émissivité de la surface dans le domaine spectral considéré.

Nous avons choisi ν_0 proche de la bande d'absorption de l' O_3 afin de limiter le temps de calcul nécessaire pour les simulations de spectres. La détermination d'une fenêtre atmosphérique dans cette région est difficile compte tenu de la faible résolution IASI, cependant $\nu_0=976.75 \text{ cm}^{-1}$ semble ne pas être trop affecté par l'absorption atmosphérique. Le calcul a été effectué en considérant, comme pour les simulations, une émissivité de surface moyenne constante égale à 0.9813. Pour une estimation précise de T_s , plusieurs fenêtres atmosphériques doivent être considérées. La méthode choisie est donc extrêmement simplifiée. L'erreur sur le calcul est cependant estimée à moins de 1 K.

Les températures de surface ainsi inversées et les températures ECMWF/Arletty sont comparées sur la figure 6.1 pour chaque période considérée. L'accord entre les deux distributions est globalement bon, avec un gradient latitudinal similaire : T_s allant de moins de 240 K en hiver à plus de 290 K en été aux moyennes latitudes et autour de 290 à 300 K toute l'année dans les tropiques. Des différences de plus de 50 K sont cependant atteintes localement, avec des températures de surface inversées inférieures aux températures Arletty. Ces écarts importants s'expliquent par la présence de nuages (forte couverture nuageuse), qui affectent fortement les spectres IMG : la température de surface inversée correspond alors à la température du sommet du nuage.

Hormis ces différences bien visibles et identifiées, nous pouvons également remarquer que la température de surface inversée est généralement légèrement plus faible que la température de surface Arletty. Plusieurs facteurs peuvent expliquer cette sous-estimation : la présence d'un bruit radiométrique sur le canal utilisé, l'émissivité moyenne utilisée, ou bien un problème de calibration des spectres IMG. Pour un bruit autour de $2.5 \cdot 10^{-8} \text{ W}/(\text{cm}^2\text{cm}^{-1}\text{sr})$ (même ordre de grandeur pour IASI et IMG dans le domaine de l' O_3), l'erreur sur l'estimation de T_s peut atteindre 1 K. Dans le domaine considéré, l'émissivité de surface varie entre environ 0.8766 pour les surfaces désertiques, 0.999 pour les surface enneigées et 1 pour les agglomérations [Wilber *et al.*, 1999]. La différence de température de surface engendrée peut aller jusqu'à environ 5 K.

Il peut également exister des inconsistances entre les températures ECMWF/Arletty et la réalité et donc entre ECMWF/Arletty et IMG.

Ne disposant pas d'estimations plus fiables des profils de température pour IMG, les profils de température ECMWF/Arletty ont été utilisés.

Au cours de la mission IASI, les températures de surface et les profils de température seront inversés de manière opérationnelle pour les applications météorologiques. Elles seront donc aussi fiables et cohérentes que possible et l'erreur associée sera connue.

6.1.2 Filtres de qualité

Filtre des cas nuageux

Quelle que soit la région spectrale considérée, les nuages ont un effet très important sur le rayonnement mesuré au sommet de l'atmosphère. Dans l'IR thermique, les nuages absorbent le rayonnement émis par la surface de la Terre et le réémettent à une température plus faible à la fois vers la surface et vers les plus hautes couches de l'atmosphère. Les spectres mesurés dans l'espace sont donc atténués par la présence de nuages. De plus, les signatures d'absorption des couches de l'atmosphère situées sous le nuage dispa-

raissent. La couverture nuageuse aura donc un impact très important sur la restitution de concentrations de constituants minoritaires troposphériques. Cet effet peut être corrigé si les caractéristiques des nuages ayant un impact sur leurs propriétés radiatives (type de nuage, épaisseur optique, altitude, *etc.*) sont connues.

L'étude des nuages est un des objectifs de la mission IASI. Une bonne connaissance de la couverture nuageuse sera donc disponible et une correction des spectres pourra être envisagée. La très bonne couverture spatiale de l'instrument permet de simplifier le traitement en éliminant les situations affectées par la présence de nuages sans perdre une proportion trop importante d'information.

La couverture nuageuse associée aux mesures IMG n'étant pas spécifiée, un filtre été développé par *Hadji-Lazaro et al.* [2001] afin d'écarter les spectres contaminés par la présence de nuages (ou de tout autre aérosol ayant un impact important). Le critère utilisé, déterminé de manière empirique et basé sur le calcul de la température de surface associée aux spectres, permet également de filtrer les cas affectés par un dysfonctionnement instrumental important. La couverture nuageuse mesurée par l'instrument POLDER (Polarization and Directionality of the Earth's Reflectances [*Deschamps et al.*, 1994; *Parol et al.*, 1999]), présent à bord de ADEOS avec IMG, a permis de valider la méthode.

Test de cohérence de l'algorithme d'inversion

Les deux luminances ($\hat{r}(1)$, $\hat{r}(2)$) restituées par l'algorithme d'inversion sont utilisées pour tester la cohérence entre la situation considérée (c'est-à-dire les paramètres d'entrée) et les situations utilisées pour la calibration du RN (partie 5.5.3). En effet, si le cas à inverser est trop éloigné des cas appris par le RN, le résultat ne sera pas fiable, voire totalement erroné. L'erreur sur la restitution des luminances sera alors élevée.

La figure 6.2 représente l'erreur de restitution relative Δr_1 de la première luminance test (luminance à 976.75 cm^{-1}), avant et après le filtre nuages, et après avoir filtré les cas pour lesquels $\Delta r_1 > 4 \%$. Les distributions obtenues sont différentes selon l'algorithme considéré : elles dépendent fortement de la phase d'apprentissage du RN. L'erreur de restitution est globalement très faible ($< 6 \%$ dans plus de 70 % des cas, $< 4 \%$ dans plus de 45 % des cas). Il existe cependant différentes zones de fortes erreurs (Δr_1 entre 10 et plus de 20 %), comme l'Afrique du Nord, les hautes latitudes et, dans une moindre mesure, le Pacifique tropical, ainsi que des valeurs extrêmement élevées plus isolées réparties sur l'ensemble du globe (Δr_1 pouvant atteindre plus de 100 %).

Après élimination des cas nuageux en utilisant le filtre nuages IMG, les plus fortes valeurs d'erreur ont disparu. Les zones de forts Δr_1 ne sont cependant pas filtrées. Même si les spectres affectés par la présence de nuages sont les cas non-appris les plus critiques, d'autres situations paraissent mal traitées par l'algorithme.

Les problèmes d'inversion au-dessus de l'Afrique du Nord ou des hautes latitudes proviennent très certainement des émissivités de surface extrêmes atteintes dans ces régions. L'apprentissage ayant été réalisé en utilisant une valeur moyenne de l'émissivité (0.9813), les situations pour lesquelles l'émissivité est trop éloignée de cette valeur sont inconnues du RN et ne peuvent être correctement inversées.

Au-dessus du Pacifique tropical, des valeurs d'erreur relativement importantes sont atteintes. Ces cas correspondent à de faibles quantités d'ozone, sous représentées lors de l'apprentissage du RN.

L'erreur $\Delta \mathbf{r} = \{\Delta r_1, \Delta r_2\}$ sur les luminances test semble donc pouvoir être associée

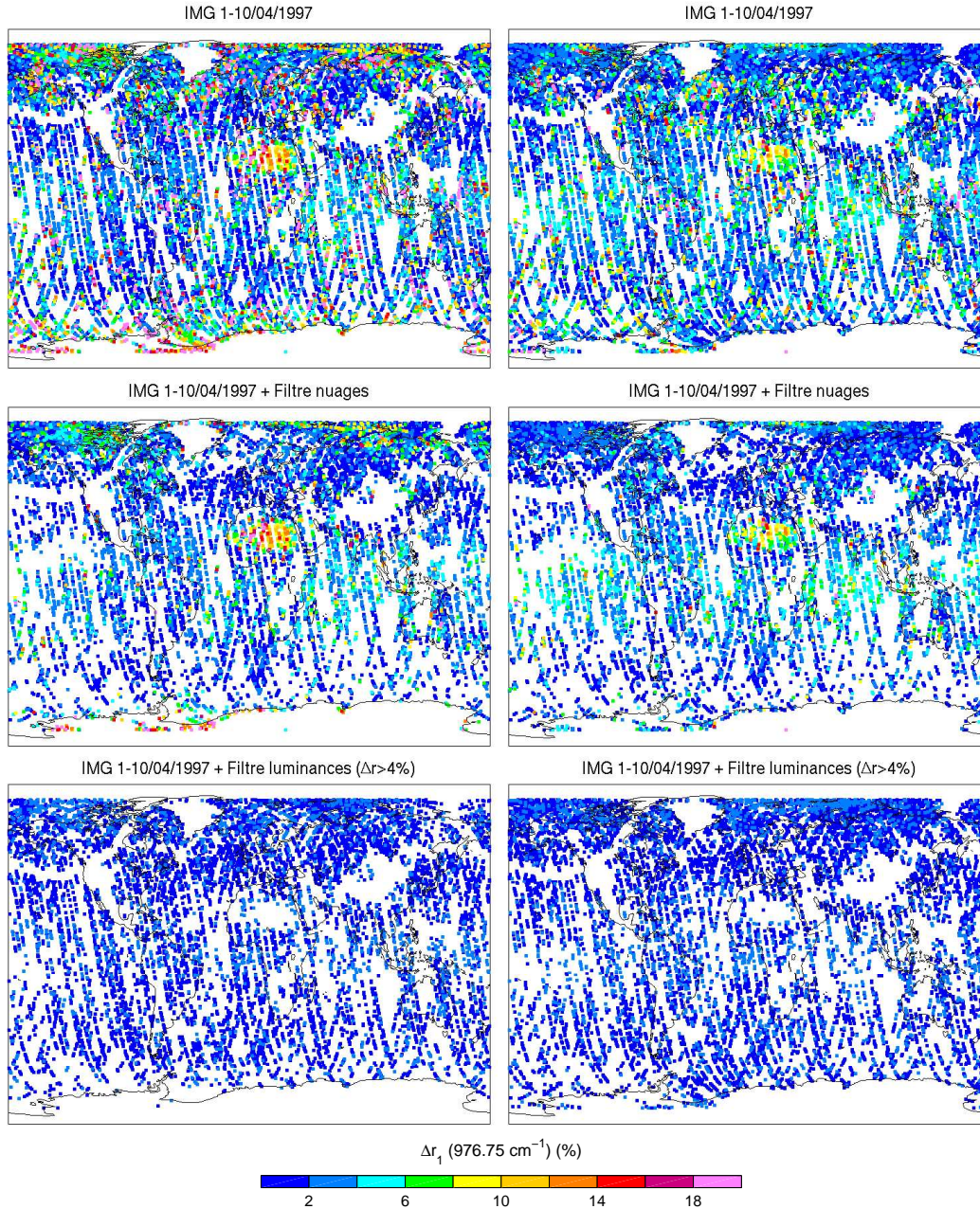


FIG. 6.2 – Distribution de l'erreur relative Δr_1 sur la restitution de la luminance à 976.75 cm^{-1} (figures de gauche : RN opérationnel, 6 sorties ; figures de droite : RN troposphérique, 3 sorties) : avant tout processus de filtrage (en haut), après le filtre nuage (au milieu), et après le test de cohérence de l'algorithme d'inversion (en bas).

à la position, dans l'espace des entrées, du cas considéré par rapport à l'ensemble d'apprentissage utilisé pour la calibration de l'algorithme. Afin de vérifier cette hypothèse, les paramètres d'entrée des exemples IMG ont été projetés sur le sous-espace réduit des entrées issu de l'analyse en composantes principales effectuée dans la partie 5.4.1 pour construire la base de données.

En ne considérant que les deux premières composantes (qui permettent de représenter

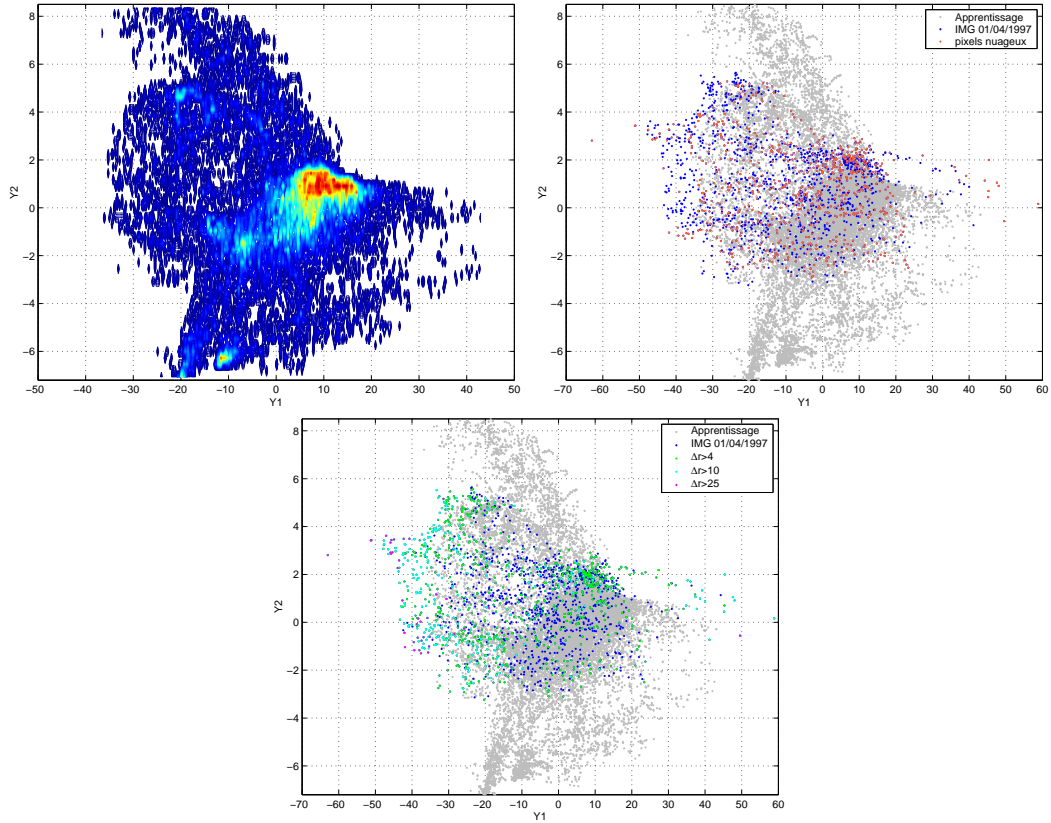


FIG. 6.3 – *Projection sur l'espace réduit des entrées (défini par les deux premières composantes principales $Y1$ et $Y2$ issus de l'ACP sur la base de données de la partie 5.4.1) des exemples de l'ensemble d'apprentissage (en gris) : avec l'effectif associé (figure de gauche, le rouge représentant un effectif maximum), avec les entrées IMG du 1^{er} avril 1997 dont les exemples nuageux sont indiqués en rouge (figure du milieu) et avec les entrées IMG du 1^{er} avril 1997 dont les exemples correspondant à différents seuil d'erreur Δr sont représentés en couleur (figure de droite).*

93.5 % de la variance), la projection sur l'espace à 2 dimensions de l'ensemble d'apprentissage et des entrées IMG du 1^{er} avril 1997 est représentée sur la figure 6.3. Nous pouvons tout d'abord remarquer (comme nous l'avons déjà souligné dans la partie 5.4.1) que l'ensemble d'apprentissage n'est pas parfaitement homogène, il existe des cas plus représentés que d'autres. La projection des cas IMG peut se trouver à une distance plus ou moins importante du centre de gravité de l'ensemble d'apprentissage.

Il est intéressant de noter que les pixels nuageux ne sortent pas forcément du domaine d'apprentissage, un grand nombre de ces cas se situent même autour de son maximum de représentativité. Ces cas sont dits "ambigus" : le RN leur associe une situation qui ne correspond pas forcément à la réalité. Les cas présentant de très fortes erreurs Δr_1 se trouvent toutefois bien aux bords du nuage de points représentant l'apprentissage, avec Δr_1 d'autant plus fort que la distance au centre de gravité est grande. Cette distance est représentée sur la figure 6.4 pour le 1^{er} avril 1997. La bonne correspondance entre sa distribution et celle de Δr_1 nous permet de vérifier que $\Delta \mathbf{r}$ peut servir d'indicateur de la position de la situation considérée par rapport à l'ensemble d'apprentissage.

Un système d'évaluation des inversions utilisant cette quantité pourrait être envisagé

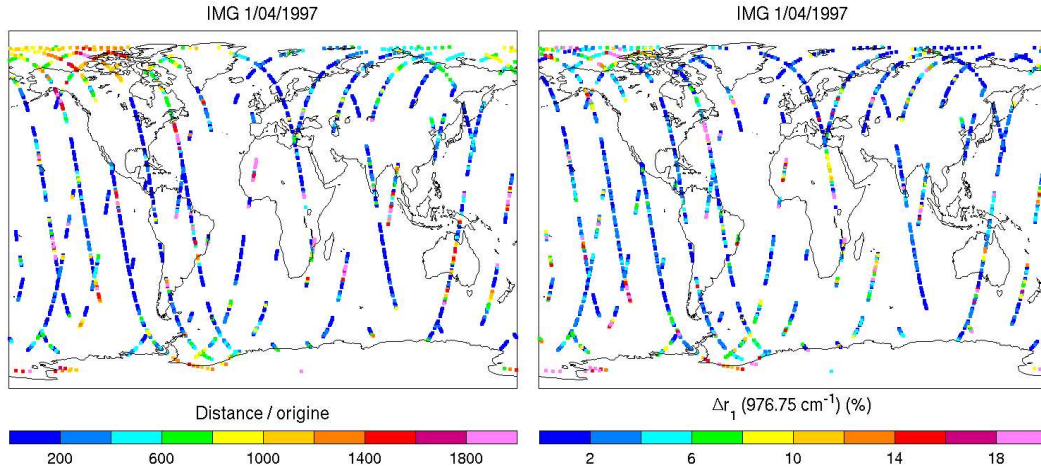


FIG. 6.4 – Distance de chacun des cas IMG du 1^{er} avril 1997 par rapport à l'origine de l'espace réduit des entrées (à gauche), et erreurs Δr_1 correspondantes (à droite).

afin de renseigner l'utilisateur sur la fiabilité des inversions par un “flag de qualité”. Cette possibilité devra être étudiée plus précisément dans le cadre de l'algorithme opérationnel IASI. Pour cette étude, nous avons utilisé $\Delta \mathbf{r}$ afin d'élaborer un second filtre des mesures dans le but de ne conserver que les cas considérés comme fiables du point de vue de l'apprentissage, c'est-à-dire cohérents avec ce que le RN a appris. En éliminant les valeurs pour lesquelles $\Delta \mathbf{r} > 4$ %, moins de 50 % des cas sont conservés.

Les deux filtres (nuages et cohérence) sont complémentaires et doivent être utilisés conjointement afin de ne garder que les inversions les plus fiables. Le nombre de spectres conservés après chaque filtre est résumé dans le tableau 6.1. Après application de ces deux filtres, un peu plus de 30 % des mesures IMG sont conservées. Pour IMG, cela représente relativement peu de point et la distribution devient très clairsemée. Pour IASI ce problème devrait être beaucoup moins important compte tenu de la très bonne couverture spatiale de l'instrument.

TAB. 6.1 – Nombre de spectres conservés selon la période considérée, pour l'algorithme opérationnel (6 sorties : $\hat{r}(1)$, $\hat{r}(2)$, $C6$, $C12$, $C16$, CT) et pour l'algorithme troposphérique (3 sorties : $\hat{r}(1)$, $\hat{r}(2)$, C_{tropo}) entre parenthèses.

	26-28/12/1996	25-28/01/1997	1-10/04/1997	16-19/06/1997
Nombre de cas	4430	6272	18156	5657
Nombre de cas non-nuageux	2701 61 %	3912 62 %	11118 61 %	3390 59.9 %
Nombre de cas $\Delta r < 4\%$	1830 (2142) 41.3 (48.3) %	2942 (3182) 46.9 (50.7) %	8942 (10069) 49.2 (55.5) %	2750 (3050) 48.6 (53.9) %
Nombre de cas conservés	1065 (1299) 24 (29.3) %	1937 (2016) 30.9 (32.1) %	5876 (6720) 32.4 (37) %	1907 (2074) 33.7 (36.7) %

6.1.3 Inversion de l'ozone

Les algorithmes d'inversion développés ont été appliqués au traitement des spectres IMG en utilisant les températures atmosphériques fournies par ECMWF.

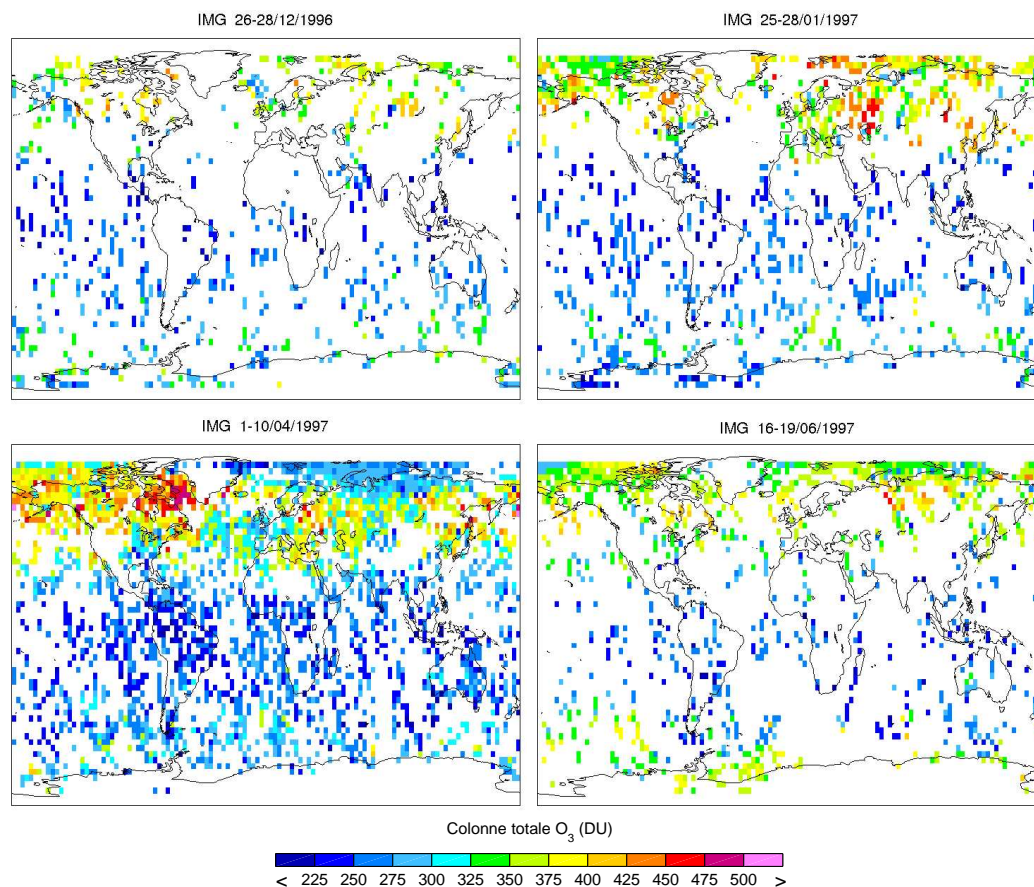


FIG. 6.5 – Distributions de colonne totale d'ozone (CT) IMG — moyennées sur une grille $3^\circ \times 3^\circ$ sur chaque période de mesure — après application des deux filtres de qualité (nuages et cohérence).

Comme nous avons pu le constater précédemment sur les distributions de T_s et Δr représentant plusieurs jours de mesures IMG, certains pixels sont difficiles à distinguer de leurs voisins lorsque la densité de mesures conservées est importante. Afin d'améliorer la lisibilité des distributions d'O₃, une moyenne des mesures disponibles sur une grille régulière $3^\circ \times 3^\circ$ est réalisée pour chaque période de mesure (en gardant à l'esprit qu'il peut n'y avoir qu'une seule mesure, voire aucune mesure, par maille). Les résultats obtenus, après application des filtres de qualité, sont présentés sur les figures 6.5, 6.7, 6.8, 6.9 et 6.6.

L'utilisation des filtres de qualité permet l'élimination des valeurs aberrantes et des discontinuités mais diminue fortement la couverture spatiale des distributions. Cette diminution rend parfois l'interprétation des distributions IMG délicate, d'autant plus que de courtes périodes de mesures sont considérées. La distribution d'avril 1997 comportant 10 jours de mesures, la couverture spatiale reste relativement bonne. C'est cette période qui sera étudiée dans le chapitre 7 sur l'interprétation des mesures IMG. Nous allons ici

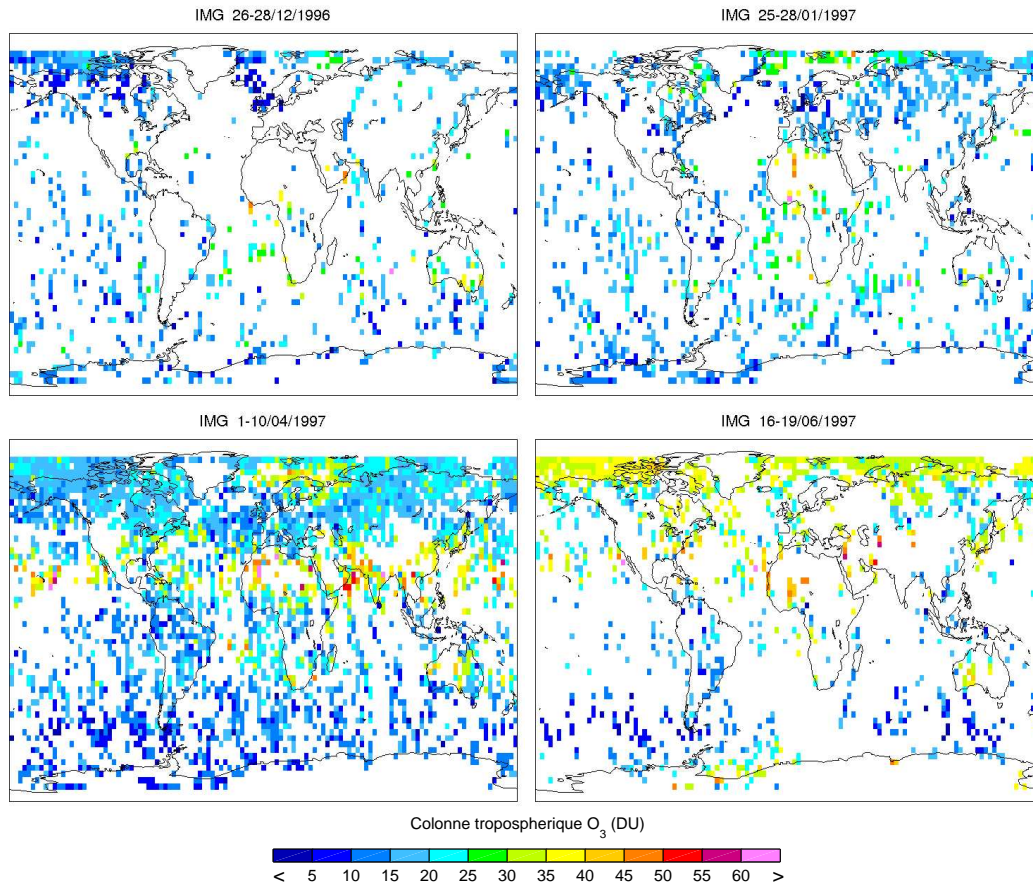


FIG. 6.6 – Même chose que la figure 6.5 pour la colonne troposphérique d'ozone (C_{tropo}) IMG.

décrire rapidement les distributions et donner quelques éléments d'interprétation basés sur la connaissance globale du bilan de l'ozone, exposée brièvement dans le premier chapitre de cette thèse.

Les colonnes totales CT les plus importantes sont obtenues au niveau des moyennes latitudes, en particulier dans l'hémisphère d'hiver (hémisphère nord pour décembre, janvier et avril, et hémisphère sud pour juin) et au-dessus de l'est de l'Amérique du Nord, de l'Europe de l'Est et de l'est de l'Asie. Les valeurs les plus faibles sont observées dans les tropiques, en particulier au-dessus de l'océan Pacifique. Nous pouvons également remarquer des colonnes particulièrement faibles autour du pôle nord en avril.

90 % de l'ozone se trouvant dans la stratosphère, les distributions de CT sont plutôt représentatifs des processus photochimiques et dynamiques caractéristiques de cette région de l'atmosphère. La durée de vie de l'ozone dans la stratosphère pouvant aller de quelques jours à plusieurs mois [IPCC, 2001], les distributions de CT observées sont largement influencées par la circulation des masses d'air stratosphériques. Celle-ci est caractérisée par de grandes régions d'ascendance au niveau des tropiques et du pôle d'été, associées à de faibles concentrations d'ozone, et par de grandes régions de subsidence aux latitudes élevées, en particulier au niveau du pôle d'hiver, associées à de fortes concentrations d'ozone. Les faibles colonnes au-dessus du pôle nord en avril sont dues à la destruction photochimique de l'O₃ stratosphérique polaire au printemps. Enfin, les valeurs de CT plus importantes au-dessus des moyennes latitudes de l'hémisphère nord ont deux origines

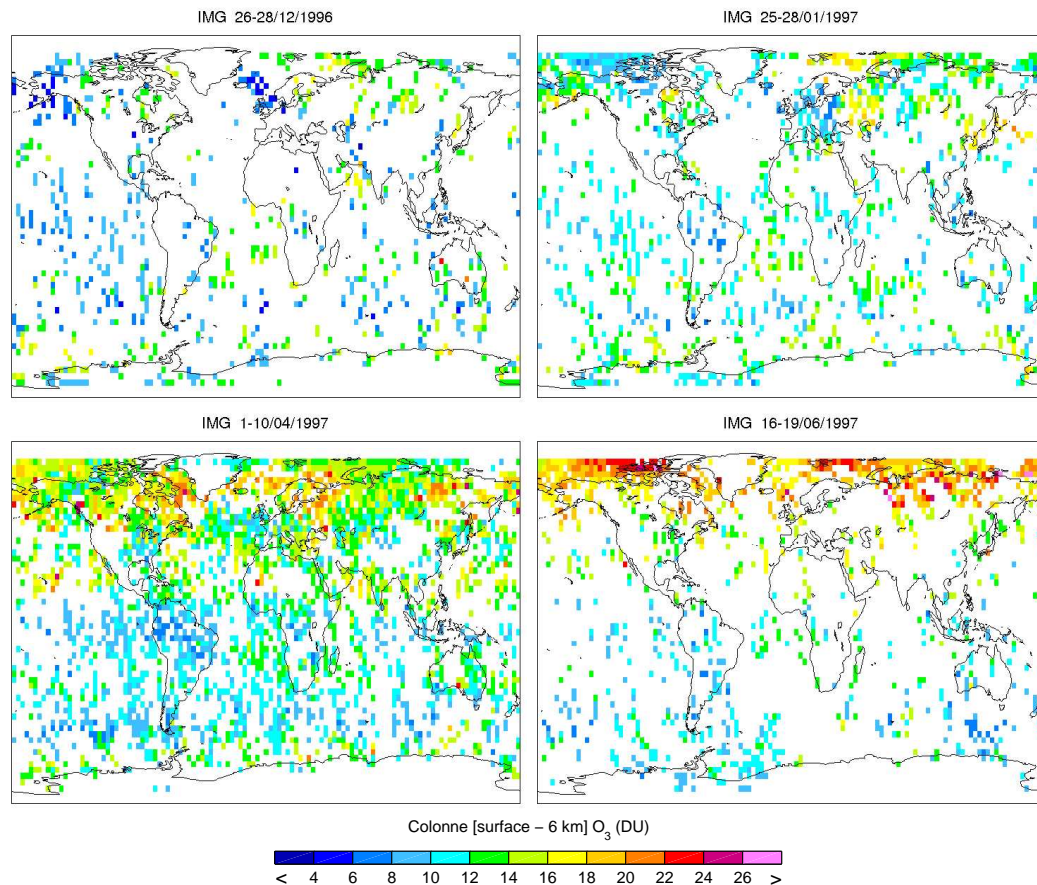


FIG. 6.7 – Même chose que la figure 6.5 pour la colonne partielle d’ozone [surface - 6 km] (C_6) IMG.

principales :

- Les maxima localisés à l’est de l’Amérique du Nord, à l’est de l’Asie et en Europe de l’Est, correspondent à des altitudes de tropopause particulièrement basses pour les régions considérées (figure 6.10), associées aux systèmes de pression (thalwegs) ;
- Les maxima localisés au-dessus des régions industrialisées de l’hémisphère nord sont dus à de fortes concentrations d’ O_3 troposphérique associées à une pollution photo-chimique anthropique accentuée.

La colonne troposphérique C_{tropo} dépend fortement de la région et de la saison considérées. Au cours des périodes de mesure de décembre 1996 et janvier 1997 (hiver dans l’hémisphère nord), les valeurs les plus importantes sont observées dans les tropiques et au-dessus de l’Afrique du Sud et de l’Australie. En avril 1997, les colonnes C_{tropo} restent importantes dans les tropiques, mais de fortes quantités sont également observées aux moyennes latitudes de l’hémisphère nord. En juin 1997, les colonnes les plus importantes sont obtenues aux moyennes et hautes latitudes de l’hémisphère nord. Des panaches de pollution sont également visibles au-dessus des océans Atlantique et Pacifique, suggérant l’importance du transport.

Ces distributions mettent en évidence les différentes régions polluées, où de grandes quantités de précurseurs de l’ O_3 sont émises par les activités humaines. La pollution est principalement technologique dans l’hémisphère nord (utilisation de combustibles fossiles,

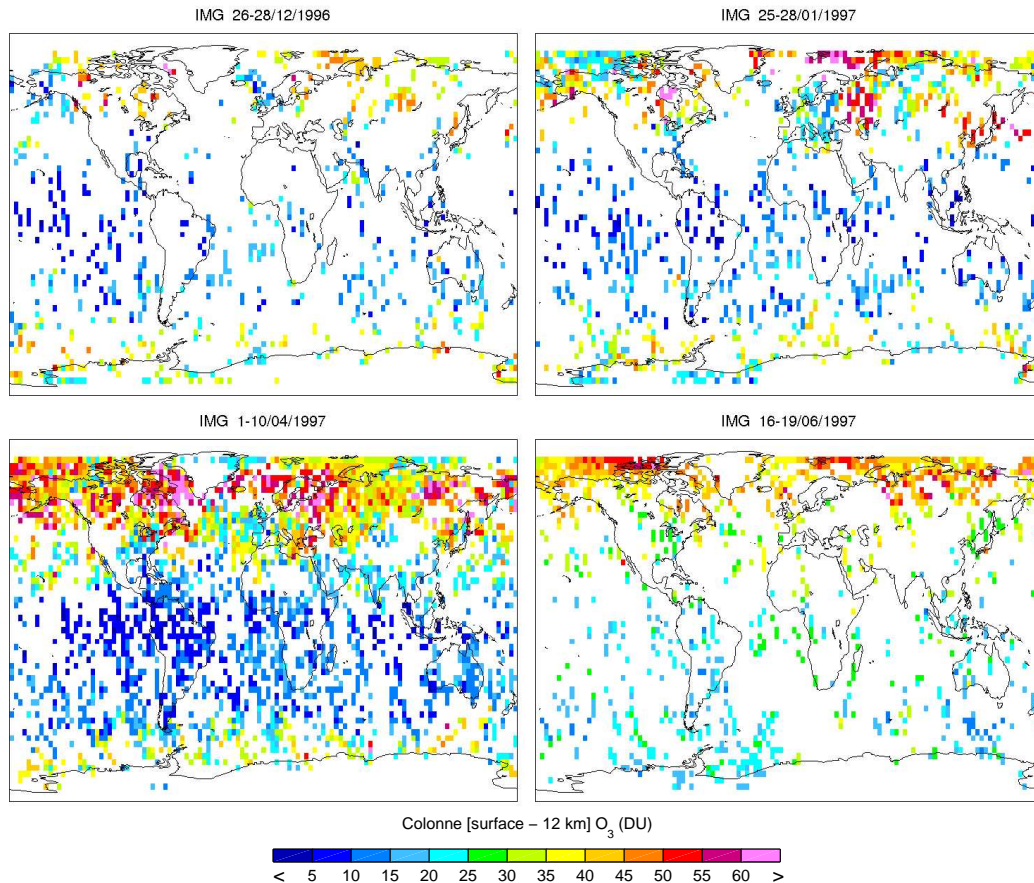


FIG. 6.8 – Même chose que la figure 6.5 pour la colonne partielle d’ozone [surface - 12 km] (C12) IMG.

liée aux transports majoritairement) et principalement associée aux pratiques agricoles de brûlage de la végétation, à l’utilisation de biocarburants, et aux éclairs dans l’hémisphère sud et les tropiques. Les émissions naturelles de précurseurs associées à la végétation, aux sols et aux éclairs doivent également être considérées dans les zones rurales.

Une forte variabilité est observée entre les périodes étudiées. Aux moyennes latitudes, cette variabilité saisonnière est principalement due à la variation de l’ensoleillement qui modifie l’efficacité de la production photochimique d’O₃, les sources technologiques ne présentant pas de variation significative des émissions suivant les saisons. Les feux de biomasse représentent une source de précurseurs importants en été dans ces régions. Les sources naturelles (biogéniques et éclairs) présentent également une variabilité saisonnière mais ces sources sont souvent minoritaires aux moyennes latitudes. Dans les tropiques en revanche, la variabilité est due à la variation des sources de précurseurs. En particulier, les feux de biomasse ont lieu pendant les saisons sèches et les émissions associées dépendent donc de la période de l’année considérée : avril-mai en Afrique centrale, août-septembre en Afrique du Sud et en Amérique du Sud [Fishman et al., 1990; Fishman et al., 1991].

D’autre part, l’ozone troposphérique ayant une durée de vie allant de quelques jours à quelques mois [IPCC, 2001], sa distribution porte la signature du transport des masses d’air (impliquant le transport de l’ozone mais également de ses précurseurs) comme le montrent les panaches d’O₃ observés au-dessus des océans.

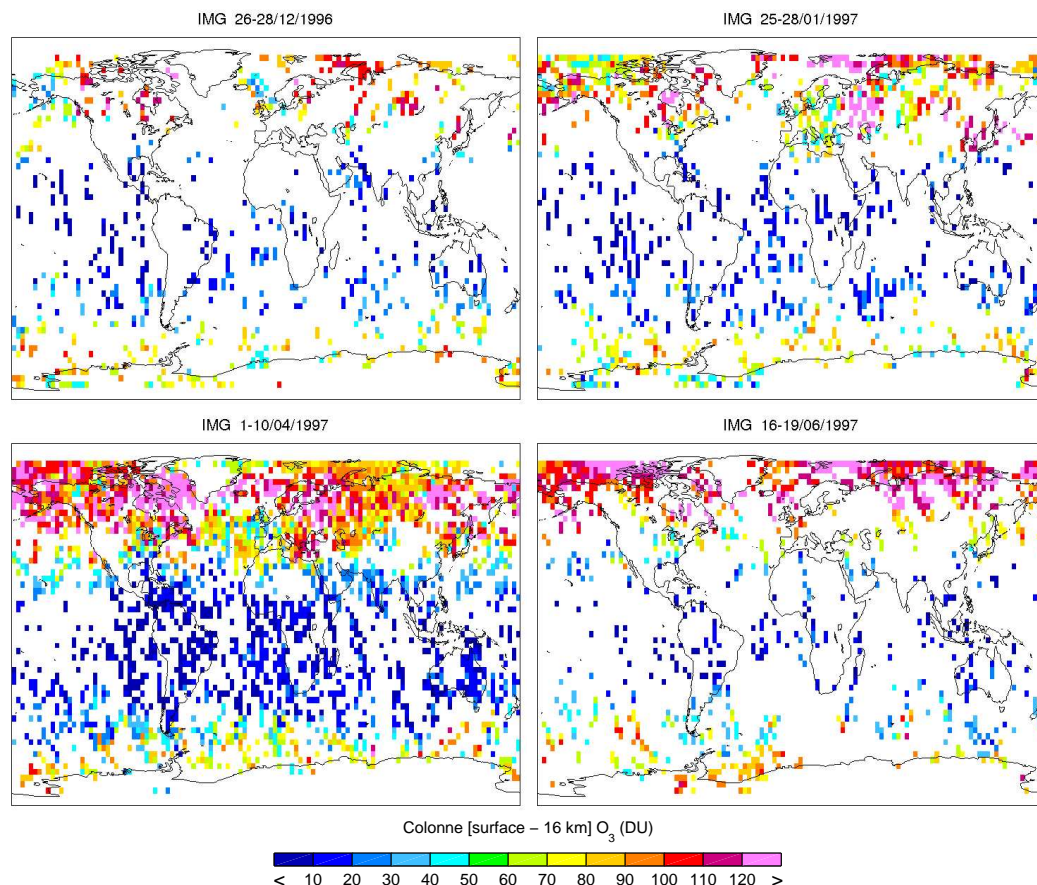


FIG. 6.9 – Même chose que la figure 6.5 pour la colonne partielle d'ozone [surface - 16 km] (C16) IMG.

Une analyse plus détaillée des distributions de *C_{tropo}* IMG est réalisée dans le chapitre 7.

La seconde approche utilisée afin d'estimer la quantité d'ozone troposphérique consiste à inverser plusieurs colonnes partielles, intégrées entre la surface et une altitude fixée (colonnes C6, C12 et C16 correspondant à l'O₃ entre la surface et 6, 12 et 16 km d'altitude respectivement). Le problème est alors de déterminer dans quelle mesure cette colonne correspond effectivement à une colonne troposphérique. Les distributions doivent pour cela être interprétées en fonction de l'altitude de la tropopause.

Celle-ci peut être déduite du profil de rapport de mélange d'ozone (forte augmentation correspondant au début de la couche d'ozone stratosphérique) ou du profil de température (altitude où le gradient de température devient supérieur à -2 K/km) [Hoinka, 1997]. C'est cette dernière définition que nous allons utiliser puisque le profil d'O₃ n'est pas connu. Dans le cadre de IASI, les profils de température seront inversés de manière opérationnelle, permettant une connaissance de l'altitude de la tropopause pour chaque mesure. Pour IMG, nous utilisons les profils de température ECMWF/Arletty.

Les distributions de l'altitude de la tropopause déduites pour les 4 périodes IMG étudiées sont représentées sur la figure 6.10. Les colonnes partielles C6 correspondent à une évaluation des quantités d'ozone dans la basse troposphère. Si cette estimation est représentative de la colonne troposphérique aux hautes latitudes, elle la sous-estime for-

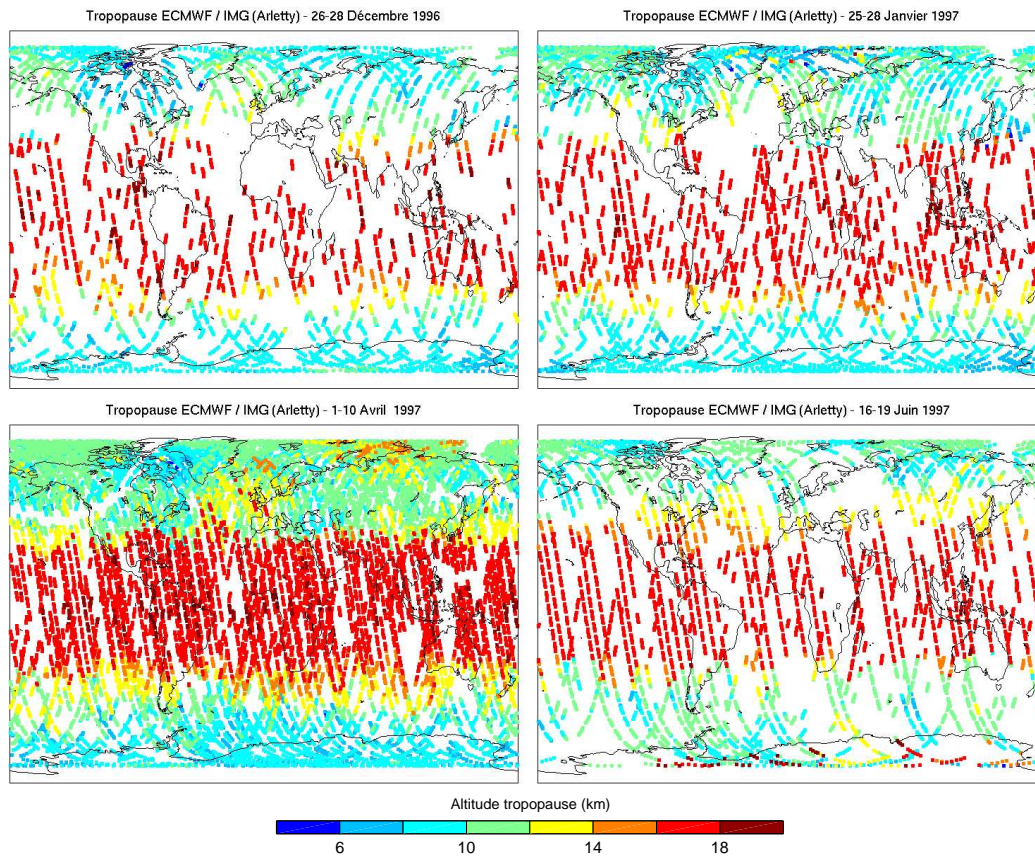


FIG. 6.10 – *Altitude de la tropopause, obtenue à partir des profils de température ECMWF interpolés pour les observations IMG (Arletty), pour les 4 périodes étudiées : 26-28 décembre 1996, 25-28 janvier 1997, 1-10 avril 1997 et 16-19 juin 1997.*

tement dans les tropiques et les sub-tropiques, où la tropopause se situe plutôt autour de 14-16 km d'altitude. Elle permet cependant de mettre en évidence les régions sources de précurseurs et de forte production d'ozone, discutées précédemment. Les colonnes C_{12} et C_{16} sont plus délicates à interpréter puisqu'elles tiennent compte à la fois de l'ozone dans la troposphère et dans la stratosphère selon l'altitude de la tropopause. Aux moyennes latitudes, la tropopause se situe globalement entre 10 et 14 km d'altitude, et C_{12} donne donc une bonne estimation de la colonne troposphérique. Pour les régions de haute latitude, où la tropopause se trouve plutôt autour de 6-10 km d'altitude, une grande partie de C_{12} correspond à de l'ozone stratosphérique, et C_6 sera une estimation légèrement sous-estimée de la colonne troposphérique. À l'inverse, dans les tropiques et sub-tropiques, où la tropopause peut atteindre des altitudes supérieures à 16 km, C_{12} néglige une grande partie de l'ozone troposphérique. La colonne C_{16} sera alors plus proche de la quantité d'ozone troposphérique.

6.1.4 Estimation de l'erreur d'inversion

Pour chaque inversion réalisée, les contributions de l'erreur de restitution associées au lissage de l'algorithme d'une part et aux incertitudes sur les paramètres d'entrée d'autre part sont calculées en suivant les méthodes décrites dans les paragraphes 5.5.2 et 5.5.2

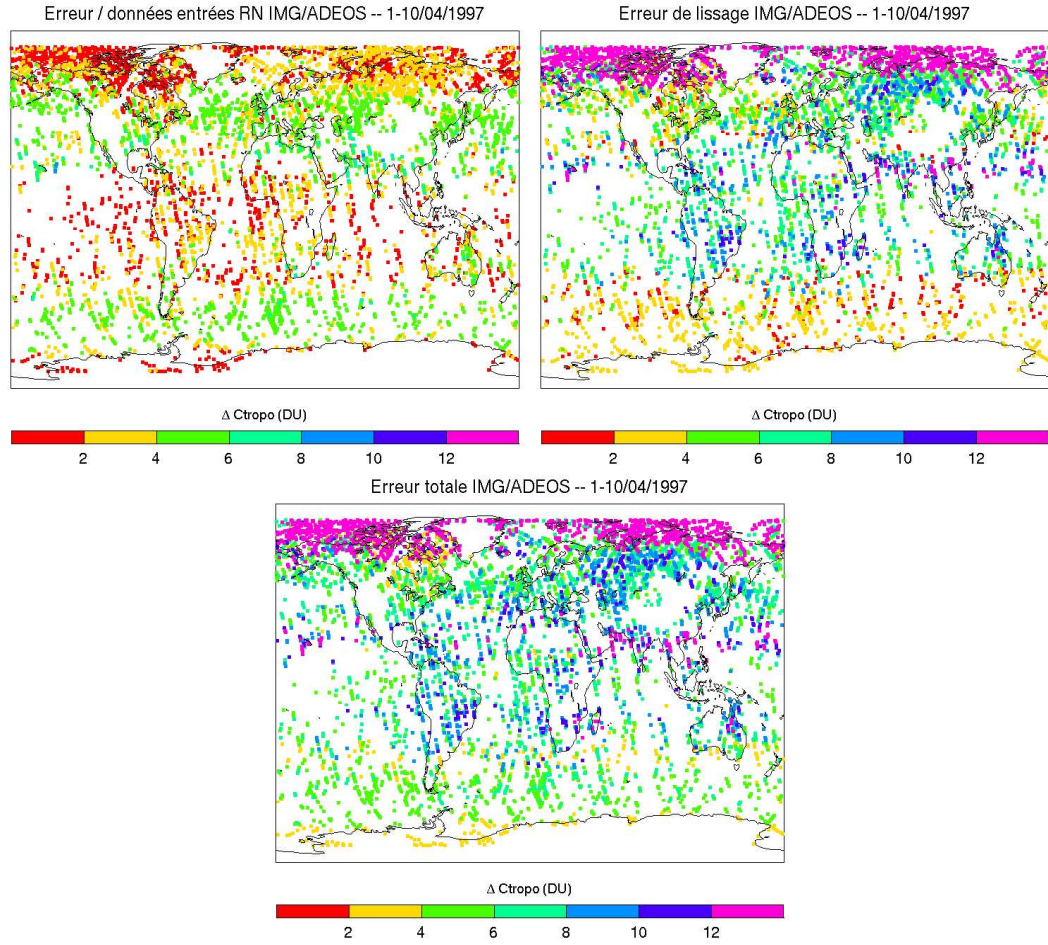


FIG. 6.11 – *Erreur d'inversion IMG estimée pour la période 1-10 avril 1997.*

respectivement.

L'erreur de lissage est évaluée à partir de situations représentatives sélectionnées grâce à une classification des exemples de la base d'apprentissage du RN (partie 5.6). Les étapes de l'estimation de cette erreur sont les suivantes :

1. Une classe de référence est attribuée à chaque cas inversé en fonction des paramètres d'entrée de ce cas. À chaque classe sont associés : un profil moyen d'ozone \mathbf{x}_a ainsi que la matrice de covariance \mathbf{S}_a et la matrice de Jacobiens \mathbf{K}_x , caractérisant la sensibilité de l'instrument à l'ozone, correspondantes;
2. Le noyau \mathbf{A} caractérisant l'inversion est calculé en multipliant les fonctions de gain \mathbf{G}_y , caractérisant la sensibilité de l'algorithme d'inversion aux luminances, et les Jacobiens \mathbf{K}_x ;
3. La covariance de l'erreur de lissage est déduite en utilisant la relation

$$\mathbf{S}_s = (\mathbf{A} - \mathbf{C}).\mathbf{S}_a.(\mathbf{A} - \mathbf{C})^T$$

où \mathbf{C} correspond au noyau idéal (opérateur colonne).

4. L'erreur de lissage est estimée par la valeur de la variance, égale à la racine de la diagonale de \mathbf{S}_s (c'est donc un vecteur de dimension égale au nombre de variables inversées).

TAB. 6.2 – Erreurs moyennes de restitution de la colonne troposphérique IMG (ΔC_{tropo} en DU) estimées pour les différentes périodes considérées, après application des filtres de qualité (filtre de cohérence seulement pour les périodes 26-28 décembre 1996 et 25-28 janvier 1997).

	Source	26-28/12/1996	25-28/01/1997	1-10/04/1997	16-19/06/1997
<i>C_{tropo}</i>	entrées	2.9	3.0	3.1	4.2
	lissage	NA	NA	7.5	NA
	total	NA	NA	8.5	NA
<i>C₆</i>	entrées	0.8	0.7	0.7	0.7
	lissage	NA	NA	3.4	NA
	total	NA	NA	3.5	NA
<i>C₁₂</i>	entrées	2.8	2.5	1.9	2.2
	lissage	NA	NA	11.3	NA
	total	NA	NA	11.6	NA
<i>C₁₆</i>	entrées	6.3	5.2	3.8	4.1
	lissage	NA	NA	18.5	NA
	total	NA	NA	19.0	NA
<i>C_T</i>	entrées	11.2	9.2	7.8	9.3
	lissage	NA	NA	25.7	NA
	total	NA	NA	27.1	NA

La classification n'ayant été réalisée que pour le mois d'avril (première étude), cette composante de l'erreur n'est pour l'instant estimée que pour la période 1-10 avril 1997.

L'erreur associée aux incertitudes sur les paramètres d'entrée est calculée en multipliant les fonctions de gain \mathbf{G}_y et \mathbf{G}_b , caractérisant la sensibilité de l'algorithme d'inversion aux luminances et aux températures, par les valeurs d'erreur sur les luminances ε et sur les températures d'entrée ε_b respectivement. Pour IMG, l'erreur sur l'estimation de la température de surface est estimée à moins de 1 K. Une incertitude $\varepsilon_{b=T_s}$ égale à 1 K est utilisée afin de maximiser l'erreur déduite. L'erreur sur le profil de température est, comme nous l'avons précisé, plus difficile à évaluer. Pour une première évaluation de l'erreur IMG, nous avons utilisé les valeurs d'erreur prévues pour IASI (*cf.* partie 5.5.2). Le bruit radiométrique IMG est estimé à $2.5 \cdot 10^{-8} \text{ W}/(\text{cm}^2\text{cm}^{-1}\text{sr})$ environ dans la bande ν_3 d'absorption de l'ozone. L'erreur ε sur les luminances d'entrée a été simulée en multipliant ce bruit par un nombre aléatoire compris entre 0 et 1. Une erreur globale peut être déduite en multipliant l'erreur sur l'ensemble des paramètres d'entrée par le gain global \mathbf{G} . La variance correspondante est également calculée en supposant des matrices de covariance d'erreur sur les entrées diagonales (erreurs non corrélées en première approximation).

L'erreur d'inversion est ensuite évaluée en effectuant la somme quadratique des variances des deux principales sources d'erreur (lissage et incertitudes sur les entrées). Les différentes composantes de l'erreur sont représentées sur la figure 6.11 pour la période 1-10 avril 1997. Les valeurs moyennes des erreurs estimées pour les différentes périodes sont données dans le tableau 6.2.

Dans le cadre de IASI, l'erreur de restitution pourra être évaluée avec plus de précision puisque les incertitudes sur les paramètres d'entrée seront fournies de manière opérationnelle.

6.2 Comparaison des inversions IMG aux mesures disponibles

Afin de valider les colonnes d'ozone inversées par IMG, nous disposons d'un grand nombre de mesures indépendantes :

- les mesures de colonnes totales d'O₃ fournies par l'instrument TOMS/ADEOS ;
- les estimations de colonnes troposphériques TOMS par différentes méthodes ;
- les profils d'ozone observés par des sondes à différentes stations de mesure, dont l'intégration permet de calculer des colonnes partielles *C6*, *C12* et *C16*, ainsi que des colonnes troposphériques *Ctropo* de référence.

Dans cette partie, nous présentons la comparaison des inversions IMG aux différentes mesures successivement. Les colonnes totales d'O₃ fournies par l'instrument TOMS/ADEOS sont dans un premier temps utilisées pour évaluer la qualité des colonnes *CT* inversées. Les mesures sondes (profils et colonnes) sont ensuite comparées aux inversions de colonnes partielles et troposphériques. Enfin, les colonnes troposphériques TOMS/ADEOS sont comparées à nos inversions de *Ctropo* IMG en deux temps : les distributions de colonnes tropicales sont dans un premier temps discutées, puis les performances obtenues par comparaison avec des mesures sondes sont comparées.

6.2.1 Colonnes totales TOMS

L'instrument TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) [Heath *et al.*, 1975], successivement présent à bord des satellites Nimbus-7 (1978-1993), Meteor-3 (1991-1994), ADEOS (1996-1997) et Earth Probe (depuis 1996), fournit depuis 1978 des quantités totales d'ozone de grande qualité, abondamment utilisées par la communauté scientifique. TOMS mesure le rayonnement solaire rétro-diffusé par l'atmosphère et la surface de la Terre ou des nuages [Klenk *et al.*, 1982]. Il utilise un mode de visée au nadir (champ de vue d'environ 50 km²) avec un balayage perpendiculaire à la trace de l'orbite sur environ 2565 km, permettant une bonne couverture spatiale.

Les données TOMS de niveau 2 sont mises à disposition sur internet par le centre de données (Data Active Archive Center ou DAAC) du GSFC (Goddard Space Flight Center) de la NASA (<http://daac.gsfc.nasa.gov>). Elles ont été corrigées afin de tenir compte de l'impact des interférences dues aux aérosols et des erreurs associées aux reflets de mer en utilisant la pseudo-version 7.5 de l'algorithme TOMS (fournie par J.-F. Lamarque² avec la permission de l'équipe de traitement de l'ozone de la NASA — NASA Ozone Processing Team).

Seules les mesures correspondant à des pixels dont la fraction nuageuse est inférieure à 20 % ont été considérées. La comparaison des colonnes totales TOMS/ADEOS avec des mesures sol a permis d'évaluer leur précision à 3 % environ [Krueger and Jaross, 1999]. L'erreur peut cependant être estimée à 6 % pour des couvertures nuageuses entre 10 et 20 % [Lamarque *et al.*, 2002].

La figure 6.12 représente les distributions d'ozone total TOMS et IMG pour le 1^{er} avril 1997, obtenues après application d'un filtre nuage pour les deux ensembles et du filtre de cohérence pour IMG. La couverture spatiale IMG est très faible par rapport à celle de TOMS. Ceci provient tout d'abord des techniques d'acquisition des spectres : IMG

²NCAR (National Center for Atmospheric Research)

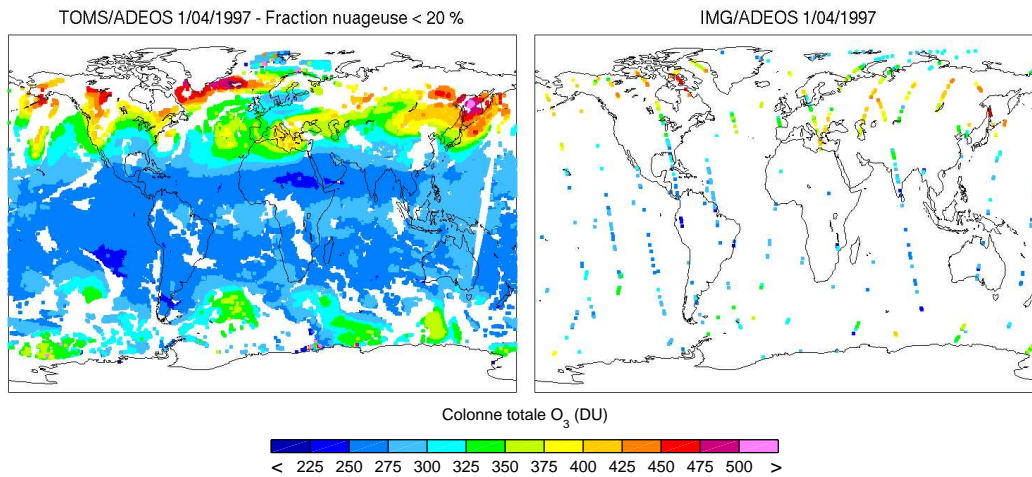


FIG. 6.12 – Distributions d’ozone total pour le 1^{er} avril 1997 observées par TOMS pour une fraction nuageuse $< 20\%$ ($\sim 60\%$ des points éliminés par ce filtre) et par IMG après l’application des filtres de qualité ($\sim 70\%$ des points éliminés).

n’effectue des mesures qu’au nadir alors que le balayage de TOMS permet des mesures de part et d’autre du nadir. D’autre part, les filtres appliqués aux mesures IMG à différentes phases de leur traitement (calibration par l’équipe IMG, filtres pour les nuages et la cohérence de l’inversion) réduisent encore le nombre de données utilisées. La comparaison des distributions est donc limitée par le nombre de points de mesure IMG.

Les deux instruments étant présents sur la même plate-forme, une très bonne correspondance spatiale et temporelle des observations est atteinte, permettant une comparaison fiable des points co-localisés. Nous avons sélectionné les mesures TOMS co-localisées aux mesures IMG à $\pm 0.5^\circ$ près en longitude et latitude et effectuées dans un intervalle de temps de ± 2 secondes autour des heures de mesure IMG.

La comparaison sur une trace ADEOS, représentée sur la figure 6.13, met en évidence la plus forte variabilité des inversions IMG ainsi que la nécessité de leur appliquer un filtre de qualité. Après filtrage, le nombre de points co-localisés considérés diminue considérablement mais les mesures IMG et TOMS sont en meilleur accord, avec cependant une tendance de IMG à sur-estimer les colonnes par rapport à TOMS, en particulier aux moyennes latitudes de l’hémisphère nord.

La moyenne zonale des distributions, réalisée sur des bandes de 5° de latitude et représentée pour chaque période sur la figure 6.14, permet de comparer les colonnes ainsi que leur variabilité en fonction de la latitude. Nous observons toujours une apparente sur-estimation des CT IMG inversées par rapport à TOMS, en particulier dans la région 10° – 40° de l’hémisphère nord. Les déviations standards associées aux valeurs moyennes IMG sont plus importantes que celles associées aux valeurs moyennes TOMS, mettant en évidence une plus faible variabilité des colonnes TOMS, particulièrement dans les tropiques.

Les valeurs moyennes des colonnes totales associées aux exemples considérés dans l’ensemble d’apprentissage sont également représentées. Les CT IMG ont une variation différente des CT de l’apprentissage, ce qui permet de vérifier la capacité de généralisation du RN.

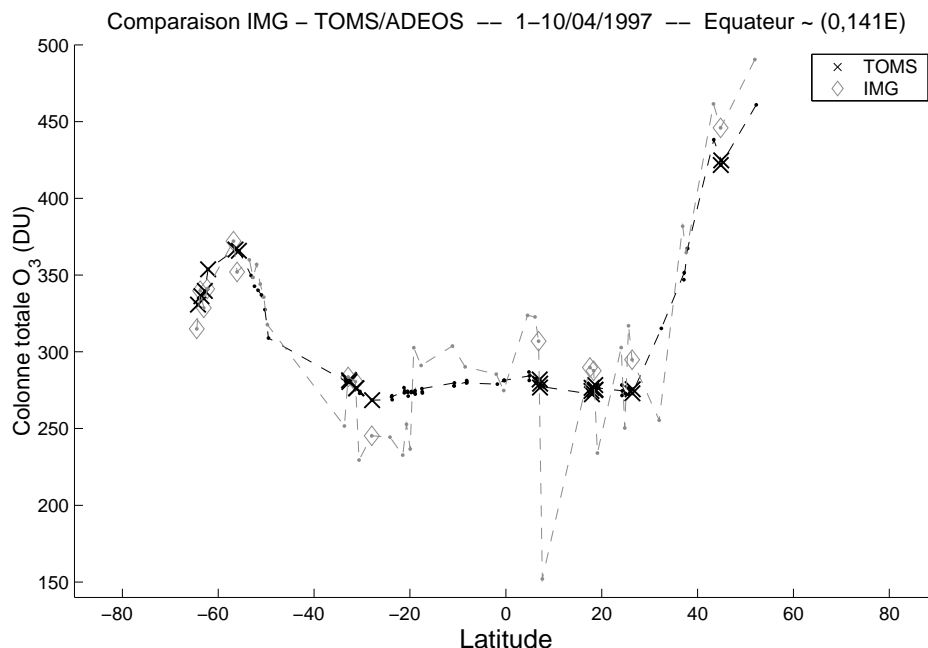


FIG. 6.13 – Comparaison des colonnes totales IMG et TOMS sur une trace ADEOS du 1^{er} avril 1997 localisée au-dessus de l'ouest du Pacifique (équateur à la longitude 141° E) avant (points gris pour IMG, noirs pour TOMS) et après application des filtres de qualité aux données IMG (losanges gris pour IMG, croix noires pour TOMS).

La comparaison statistique directe des colonnes est représentée pour chaque période considérée sur la figure 6.15. 3494 points co-localisés sont comparés sur les 4 périodes étudiées. Le biais moyen est de 6.5 DU environ (2.3 %), la différence quadratique (RMS) de 30.5 DU environ (11 %) et la corrélation meilleure que 0.8.

L'accord entre IMG et TOMS est donc globalement bon. Les biais positifs obtenus vérifient la nette tendance de IMG à sur-estimer les colonnes par rapport à TOMS. Cependant, la très bonne corrélation entre les distributions permet de valider la capacité de IMG à mesurer la variabilité de la colonne totale d'O₃.

Les différences observées s'expliquent par la différence de modes d'observation entre les deux instruments qui se répercute sur leur sensibilité respective aux couches atmosphériques : la sensibilité maximale est atteinte dans la stratosphère pour TOMS et dans la troposphère libre pour IMG. La sensibilité de TOMS à la basse troposphère est fortement diminuée par les faibles albédo de surface au-dessus des surfaces non-gelées et par la forte contribution de la diffusion Rayleigh [Klenk *et al.*, 1982; Hudson *et al.*, 1995; Kim *et al.*, 2001; Martin *et al.*, 2002a]. La contribution de la troposphère libre sera plus importante pour IMG que pour TOMS, ce qui peut expliquer le biais plus important aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord et la plus forte variabilité de IMG.

Des différences plus locales peuvent également provenir de pixels partiellement nuageux, qui peuvent être conservés après le filtre, ou d'observations qui ne sont pas exactement co-localisées. Les différences importantes au-dessus des hautes latitudes peuvent être attribuées à la dégradation de la précision de TOMS aux angles solaires zénithaux plus élevés dans ces régions. Enfin, dans les tropiques et sub-tropiques, la sur-estimation de IMG peut être due à une représentation insuffisante des faibles colonnes ($CT < 250$

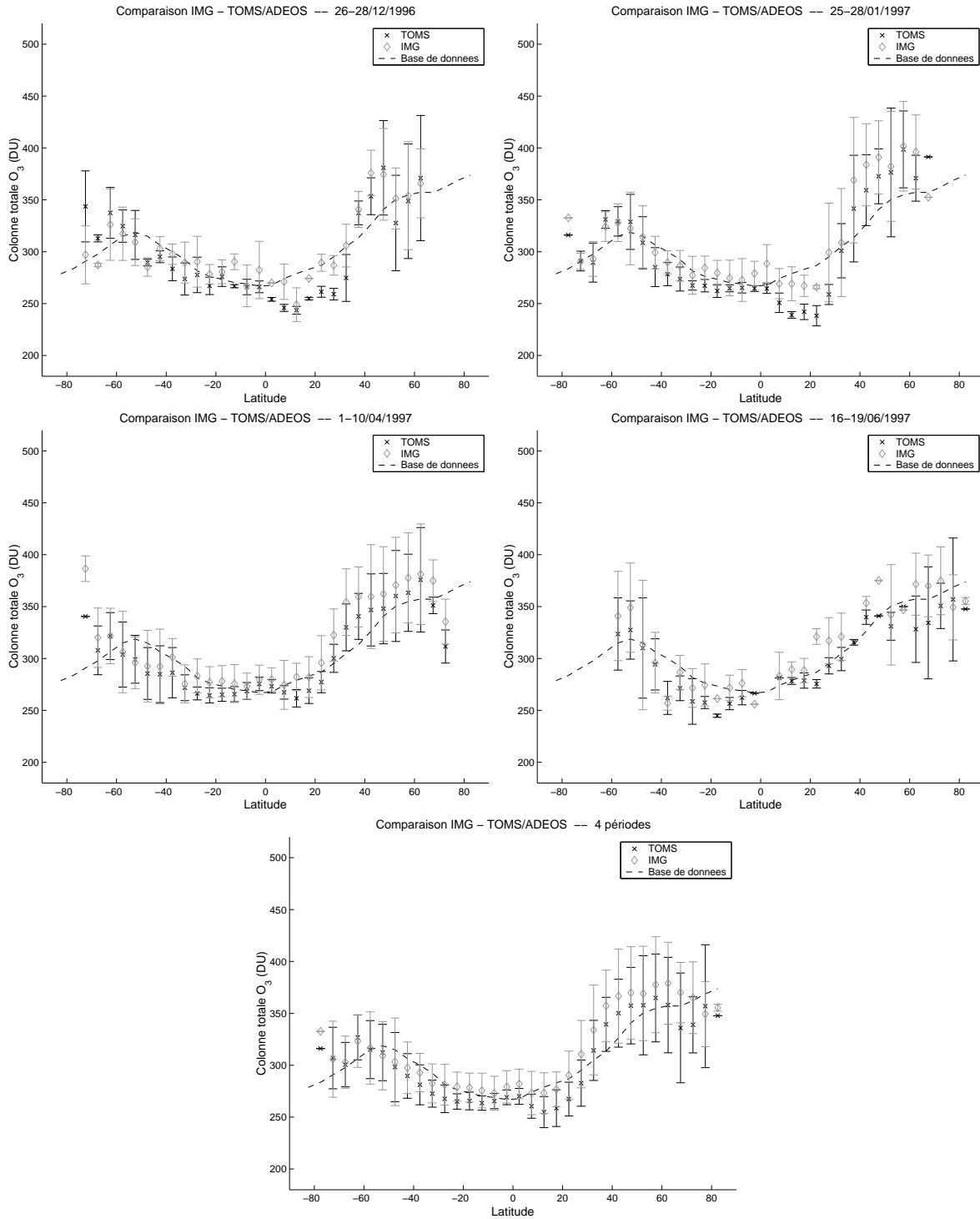


FIG. 6.14 – Colonnes totales d'ozone obtenues pour TOMS, IMG et l'ensemble d'apprentissage, moyennées sur des bandes de latitude de 5° (valeurs moyennes et déviations standard associées).

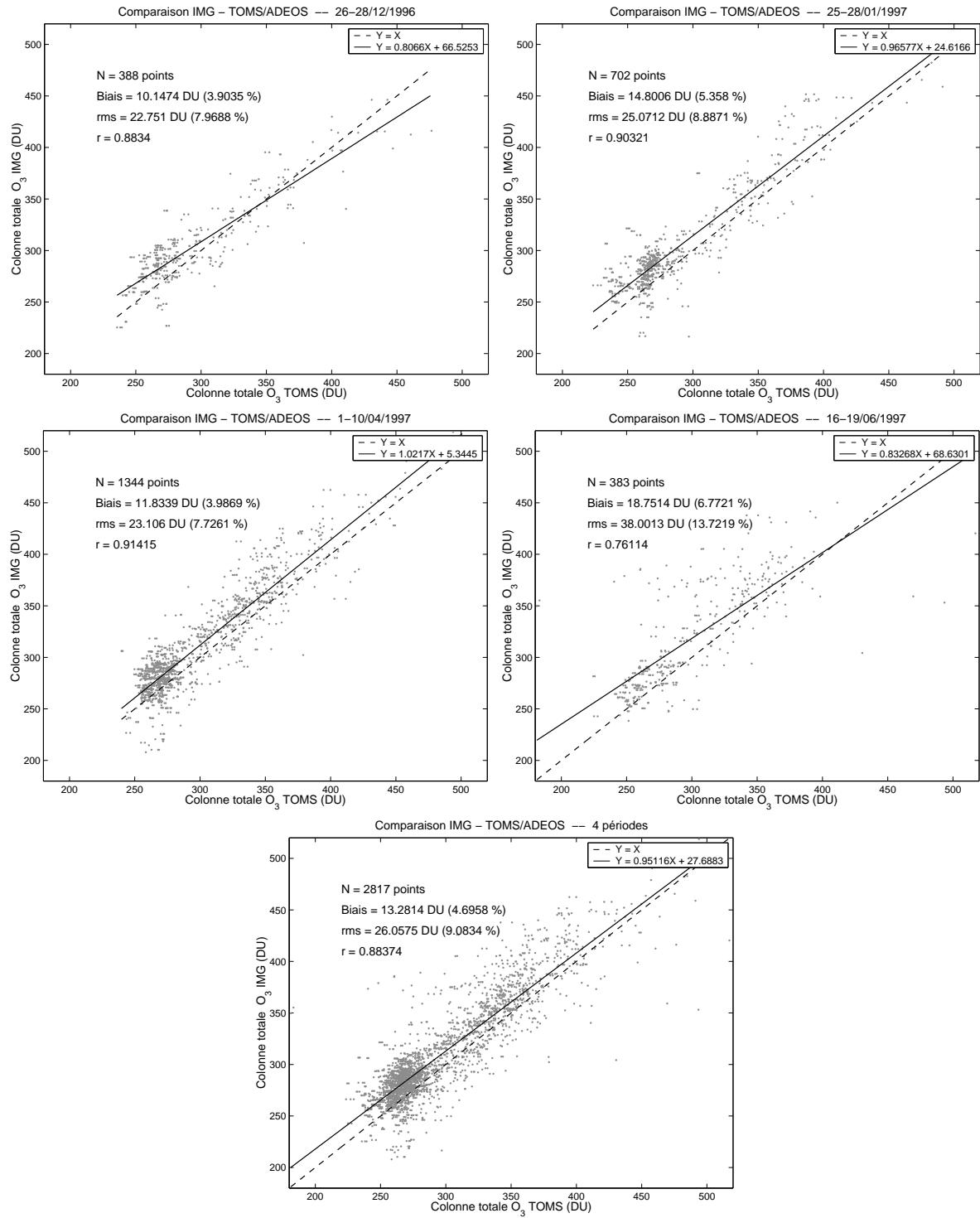


FIG. 6.15 – Comparaison des colonnes totales TOMS et IMG filtrées.

DU) dans l'ensemble d'apprentissage.

La comparaison directe a cependant permis de vérifier que les spectres mesurés dans l'IR thermique permettent l'inversion d'une colonne totale d'O₃ de bonne qualité. Ces mesures présentent d'autre part l'avantage de fournir des observations de jour et de nuit. La comparaison des colonnes totales inversées à partir des mesures IR de l'instrument TOVS (à partir du canal à 9.7 μm) et des mesures TOMS réalisée par *Drouin et Karcher* [2003] a mis en évidence un biais systématique de -35 DU (les mesures IR donnent des colonnes systématiquement plus faibles que TOMS). Ce biais est attribué à la plus faible sensibilité des mesures IR à la haute atmosphère (au-dessus de 40 hPa). L'estimation de l'erreur IMG a montré qu'une incertitude de 26 DU environ sur CT est associée à la sensibilité du système d'observation IMG (erreur de lissage).

Afin de tenir compte de ces différences de sensibilité et de méthodes d'inversion utilisées, une comparaison plus correcte devrait être réalisée en utilisant les noyaux et l'information *a priori* associés aux deux instruments [*Rodgers and Connor*, 2003]. Il est cependant difficile d'accéder à ces paramètres pour TOMS : leur intérêt n'ayant été mis en évidence que récemment, ils ne sont pas spécifiés dans la littérature et ne sont pas fournis avec les données. *Martin et al.* [2002] ont proposé une méthode utilisant un modèle de chimie-transport pour corriger les données TOMS dans la basse troposphère tropicale : la correction augmente les colonnes troposphériques déduites des colonnes totales TOMS d'environ 3-5 DU au-dessus des régions polluées (combustion de la biomasse dans les tropiques) et la diminue d'environ 2-5 DU au-dessus des océans. Une méthode d'évaluation des noyaux pour les mesures de colonnes totales à partir des mesures dans l'UV-visible a récemment été proposée par *Eskes et Boersma* [2003] (pour l'instrument GOME en particulier). Ils montrent en particulier l'importance de l'utilisation de ces profils de sensibilité pour l'interprétation des données.

6.2.2 Sondes d'ozone

Les profils d'ozone observés par des sondes aux différentes stations de mesure du WMO (World Meteorological Organization) dispersées sur tout le globe permettent la comparaison des colonnes partielles IMG inversées à des mesures indépendantes de très bonne qualité.

Deux types de comparaisons ont été réalisées. La comparaison directe permet dans un premier temps de tester la validité d'une exploitation scientifique directe des données. Les données inversées dépendent cependant fortement du système d'observation considéré. Ainsi, les inversions IASI/IMG dépendent des caractéristiques de l'instrument et de l'algorithme d'inversion développé. Une deuxième étude a donc été réalisée afin de tenir compte de ces caractéristiques pour une utilisation et une comparaison plus fiable des mesures [*Rodgers and Connor*, 2003].

Les données sondes utilisées

Les données mises à disposition par le WOUDC³ (World Ozone and Ultraviolet Data Center) pour les périodes de mesure IMG considérées (26-28/12/1996, 25-28/01/1997, 1-10/04/1997 et 16-19/06/1997) ont été utilisées. Les stations de mesure correspondantes sont brièvement décrites dans le tableau 6.3 et localisées sur la figure 6.16.

³ftp ://woudc :woudc*@ftp.tor.ec.gc.ca/

TAB. 6.3 – Stations sondes WMO ayant effectué des mesures pendant la période d'observation IMG (et dont les mesures sont fournies par le WOUDC).

Code	Nom	Pays	Latitude,longitude, altitude (m)	Type de sonde
007	Kagoshima	Japon	31.55,130.55,31	KC
010	New Dehli	Inde	28.65,77.237,220	Ind
012	Sapporo	Japon	43.05,141.333,19	KC
014	Tateno	Japon	36.05,140.1,31	KC
018	Alert	Canada	82.5,-62.3,62	ECC
021	Edmonton (Stony Pl.)	Canada	53.55,-114.1,766	ECC
024	Resolute	Canada	74.72,-94.98,64	ECC
029	MacQuarie Island	Australie	-54.5,158.967,6	ECC
043	Lerwick	Allemagne	60.13,-1.18,80	ECC
053	Uccle	Belgique	50.8,4.35,100	ECC
067	Boulder	USA	40.03,-105.25,1689	BM
076	Goose Bay	Canada	53.32,-60.3,44	ECC
077	Churchill	Canada	58.75,-94.07,35	ECC
089	Ny-Ålesund	Norvège	78.933,11.883,-1	ECC
099	Hohenpeissenberg	Allemagne	47.08,11.02,975	BM
101	Syoma	Japon	-69.39,58,21	KC
107	Wallops Island	USA	37.933,-75.483,13	ECC
156	Payerne	Suisse	46.49,6.57,491	BM
174	Lindenberg	Allemagne	52.21,14.12,112	ECC
175	Nairobi	Kenya	-1.267,36.8,1710	ECC
190	Naha	Japon	26.2,127.683,27	KC
191	Samoa	American Samoa	-14.23,-170.56,82	ECC
205	Thivanorum	Inde	8.483,76.95,60	Ind
221	Legionowo	Pologne	52.4,20.967,96	ECC
233	Marambio	Antarctique	-64.233,-56.717,196	ECC
242	Prague	République Tchèque	50.02,14.45,304	ECC
254	Laverton	Australie	-37.867,144.75,21	ECC
256	Lauder	Nouvelle Zélande	-45.044,169.684,370	ECC
262	Sodankylä	Finlande	67.39,26.65,179	ECC
315	Eureka	Canada	80.05,-86.42,610	ECC
316	DeBilt	Pays-Bas	52.10,5.18,4	ECC
318	Valentia Observatory	Irlande	51.93,-10.25,14	ECC
323	Neumayer	Antarctique	-70.65,-8.26,42	ECC
348	Ankara	Turquie	39.95,32.883,891	ECC
404	Jokioinen	Finlande	60.8,23.5,103	ECC
432	Papeete (Tahiti)	Polynésie Française	-18,-149,2	ECC
438	Suva	Fiji	-18.13,178.4,6	ECC
441	Ile de Pâques	Chilie	-27.17,-109.42,69.2	ECC

38 stations ont effectué des mesures pendant les périodes étudiées. Elles sont principalement localisées dans l'hémisphère nord, avec seulement 11 stations dans l'hémisphère sud et 3 stations dans les tropiques. À la faible couverture spatiale des stations s'ajoute le fait que de courtes périodes IMG sont analysées. Le nombre de mesures à la fois si-

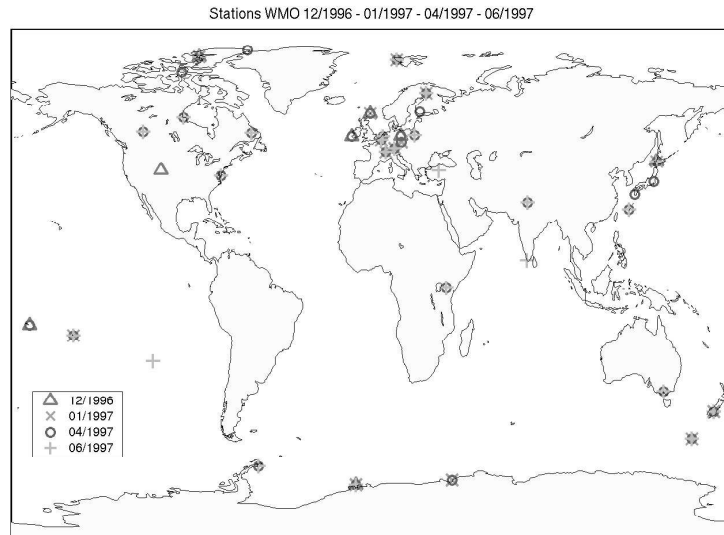


FIG. 6.16 – Stations sondes du WMO ayant effectué des mesures pendant les périodes IMG étudiées : 26-28/12/1996, 25-28/01/1997, 1-10/04/1997 et 16-19/06/1997 (tableau 6.3).

multanées et co-localisées est donc très limité. Afin d'augmenter le nombre de situations comparées, nous avons choisi de considérer les mesures sondes moyennées sur chacune des périodes étudiées. Les jours comparés ne seront donc pas toujours les mêmes. Pour chaque station, les données sont comparées aux mesures IMG co-localisées à $\pm 2.5^\circ$ en latitude et longitude.

Différents types de sondes, basés sur la sonde Brewer Mast (BM) [Brewer and Milford, 1960; Beekmann et al., 1994] ou sur la cellule ECC (Electrochemical Concentration Cell) [Kohmyr, 1969; Kohmyr, 1995] sont utilisés. Les principes de mesure utilisent tous la réaction de l'iodure de potassium avec l'ozone. Les stations japonaises utilisent une variante de la sonde ECC, la sonde KC (Carbon Iodine), et les sondes indiennes (Ind) sont des sondes de type Brewer. Les erreurs de mesure associées varient entre 5 et 10 % [Logan, 1994; Logan, 1999]. Les profils mesurés sont d'autre part moins fiables pour les altitudes supérieures à 30 km environ [Beekmann, communication privée]. Seules les mesures allant au-delà de 16 km d'altitude ont été conservées (seulement deux profils éliminés). Les données mesurées par des instruments non spécifiés (non identifiés) ont été écartées.

Afin de calculer la colonne troposphérique, la tropopause thermique a été déterminée à partir du profil de température fourni avec chaque profil d'ozone. Elle est définie comme l'altitude la plus basse à laquelle la température diminue de moins de $2^\circ\text{K}/\text{km}$ [Hoinka, 1997]. Le gradient moyen à partir de ce niveau et pendant 2 km ne doit d'autre part pas excéder $2^\circ\text{K}/\text{km}$.

Comparaison directe IMG-sondes

Pour chaque colonne partielle d' O_3 inversée, les valeurs moyennes calculées à chaque station sont indiquées sur les distributions IMG moyennées (grille $3^\circ \times 3^\circ$) sur les figures 6.17, 6.18, 6.19 et 6.20 pour chaque période.

D'après ces cartes, les colonnes sont généralement en bon accord au-dessus des stations tropicales, localisées à Nairobi (Kenya) et dans l'océan Pacifique. Les inversions IMG

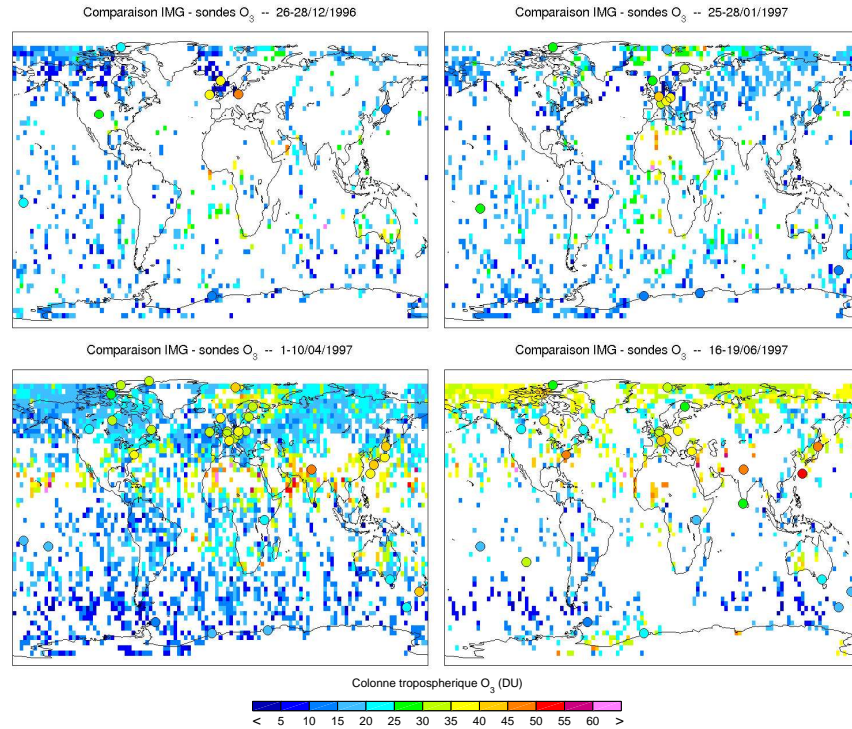


FIG. 6.17 – Distribution des colonnes troposphériques inversées IMG et calculées à partir des profils sondes (points colorés), en moyenne sur la période considérée (grille $3^\circ \times 3^\circ$ pour IMG).

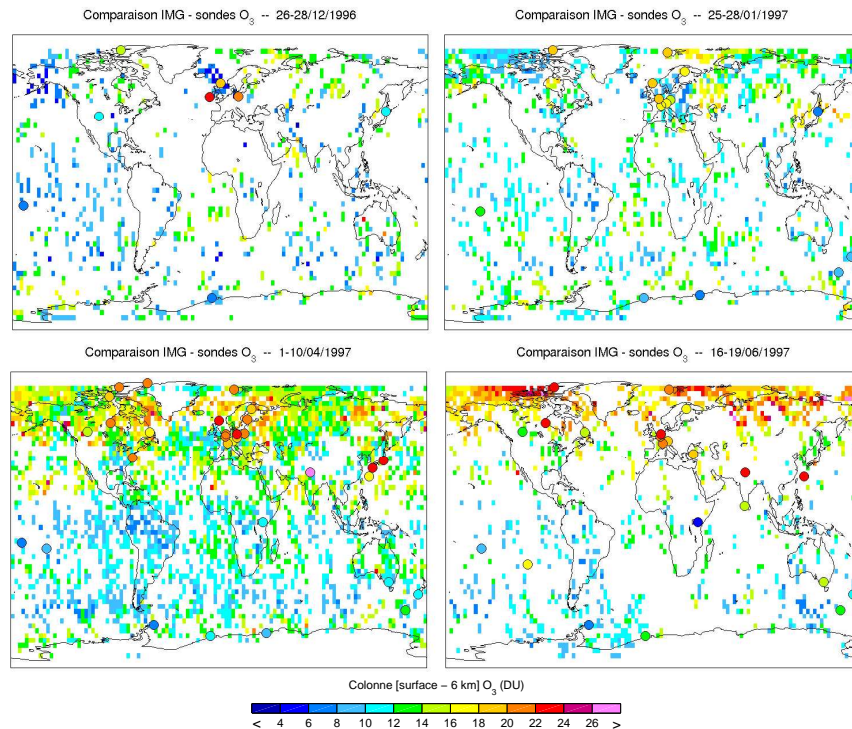


FIG. 6.18 – Même chose que sur la figure 6.17 pour la colonne [0 - 6 km] d'ozone C6.

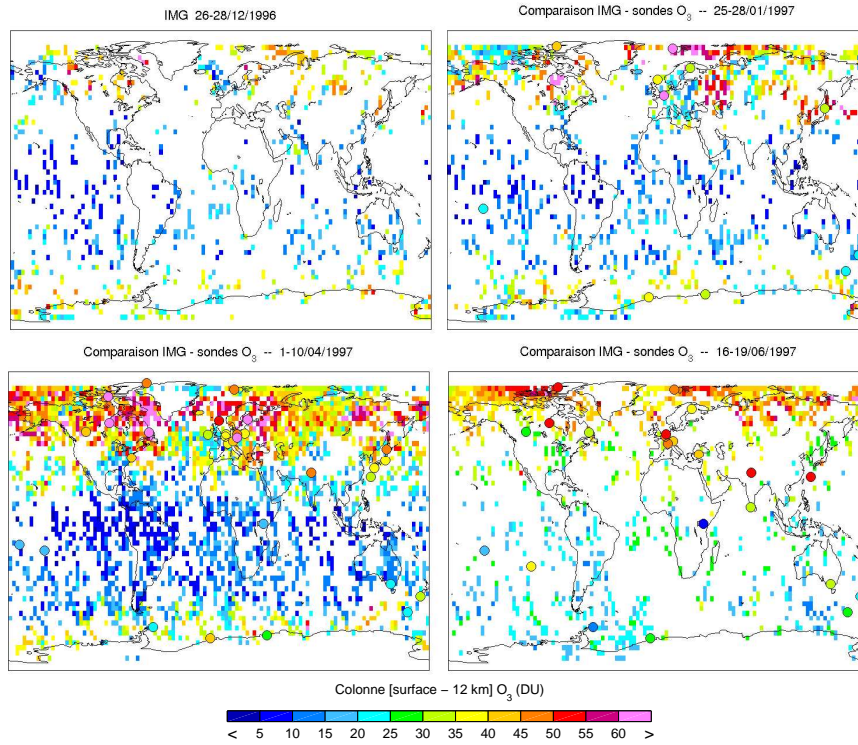


FIG. 6.19 – Même chose que sur la figure 6.17 pour la colonne [0 - 12 km] d’ozone C12.

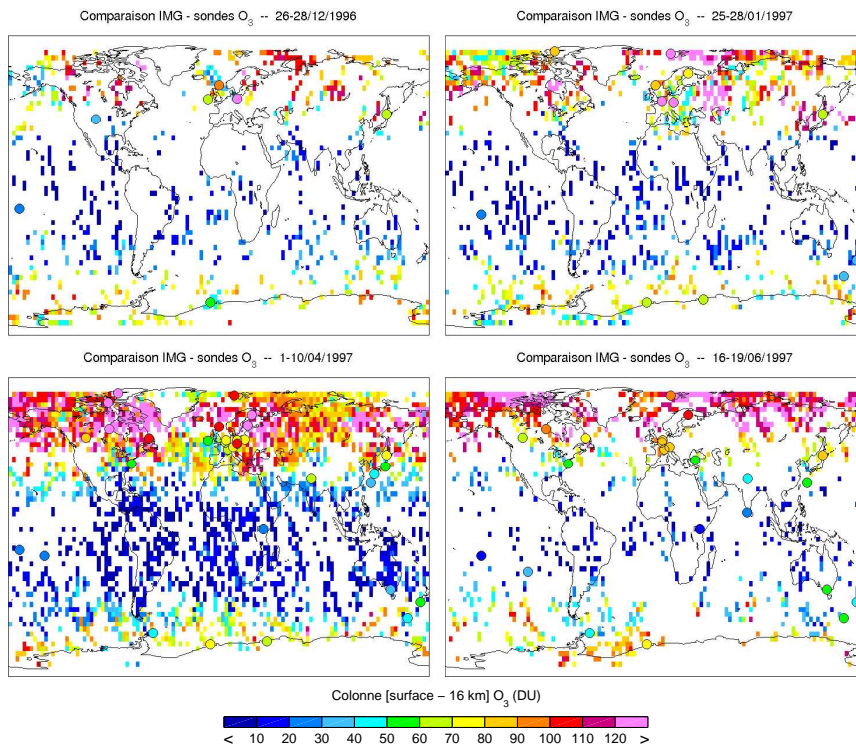


FIG. 6.20 – Même chose que sur la figure 6.17 pour la colonne [0 - 16 km] d’ozone C16.

TAB. 6.4 – *Comparaison des colonnes partielles d’ozone inversées à partir des mesures IMG et de celles calculées à partir des mesures sondes aux différentes stations : Δ =(sonde-IMG) en DU. Le nombre N de mesures co-localisées considérées est également indiqué. Lorsqu’il est différent selon l’algorithme considéré, les deux valeurs sont indiquées, la première correspondant à l’algorithme troposphérique. Lorsque N est supérieur à 1, l’erreur RMS est spécifiée entre parenthèses.*

Station	N	ΔC_{tropo}	$\Delta C6$	$\Delta C12$	$\Delta C16$
010 New Dehli	1	20.9 (-)	14.7 (-)	26.2 (-)	28.4 (-)
012 Sapporo	4	-1 (14)	4.7 (13.4)	7.5 (21.4)	-3.6 (32.5)
014 Tateno	4	0.2 (4.2)	7.1 (8.4)	0.5 (6.5)	-32.3 (38.1)
018 Alert	2	14.2 (20.1)	8.1 (11.5)	17.6 (27)	37.4 (54.6)
021 Edmonton	2	-0.7 (1)	-1.4 (2.2)	-6.8 (19.1)	-26.5 (39)
024 Resolute	2	2.7 (3.8)	5 (7.7)	22.1 (36.2)	35.6 (53)
029 MacQuarie Island	2	-0.7 (15)	0.4 (4.2)	-0.2 (5.5)	-10.4 (20.9)
043 Lerwick	6/2	19.6 (22)	10.6 (14.9)	17.4 (25)	27.2 (38.5)
053 Uccle	9	6.5 (9.9)	8.5 (9.8)	14.3 (20.3)	9.8 (32.4)
076 Goose Bay	3	1.9 (9.6)	-1.7 (3.4)	-0.4 (12.5)	-27.7 (38.7)
077 Churchill	2	8.5 (16.9)	-	-	-
089 Ny-Ålesund	6	2.2 (13.3)	2.9 (4)	6.9 (11.8)	8.3 (22.1)
099 Hohenpeissenberg	5	9.6 (12.3)	4.5 (20.8)	9.4 (20.8)	-5.4 (35.4)
101 Syoma	3	-7.1 (9.1)	-5 (6.3)	0.5 (7.3)	-8.7 (13.2)
107 Wallops Island	4/2	8.7 (10.3)	8 (11.3)	14.5 (21.2)	-6.1 (11.6)
156 Payerne	6	12 (18.2)	6.8 (7.7)	12.3 (16.7)	13.3 (23.2)
174 Lindenberg	3	15.7 (19.7)	11 (13.6)	12.5 (15.5)	-3.3 (15.1)
221 Legionowo	2	13.8 (19.8)	10 (14.2)	7.4 (10.5)	1.5 (28.9)
233 Marambio	2	-5.9 (9.6)	-4.9 (7)	-9.8 (14.2)	-20.9 (31.2)
242 Prague	5	11.8 (15.2)	6.4 (7.2)	25.8 (35.7)	29.6 (50.2)
254 Laverton	2	1.1 (5.5)	2.3 (3.8)	1.3 (5.6)	-2 (8)
256 Lauder	3	18.5 (35.1)	0.3 (1.7)	7.3 (14.7)	6.1 (23.5)
262 Sodankylä	6	7.3 (11)	3.5 (3.8)	16.9 (19.9)	26.6 (31.1)
316 DeBilt	3	4.1 (5.2)	9.5 (12.1)	11.6 (17.2)	14.2 (32)
318 Valentia Observatory	2	17.7 (25.4)	14 (19.8)	10 (14.4)	-0.5 (1.2)
323 Neumayer	7	-5.6 (8)	-3.4 (3.7)	3.4 (5.2)	-7.6 (11.6)
404 Jokioinen	6	11 (18)	1.7 (2.3)	8.1 (18.5)	-0.2 (26)

sont également proches des mesures pour la plupart des stations situées dans les hautes latitudes de l’hémisphère sud et de l’hémisphère nord. Des différences plus importantes sont observées au-dessus des moyennes latitudes de l’hémisphère nord. Au-dessus des différentes stations européennes, japonaises et au-dessus de la station de New-Dehli en Inde, les colonnes mesurées par les sondes sont très nettement supérieures à celles inversées pour IMG. Une comparaison plus précise est reportée dans le tableau 6.4. Le biais moyen obtenu entre les colonnes sondes et les colonnes inversées pour IMG est de 6.8 DU pour C_{tropo} , 4.3 DU pour $C6$, 9.5 DU pour $C12$ et 3.6 DU pour $C16$, et leur différence quadratique est égale à 13 DU pour C_{tropo} , 7.1 DU pour $C6$, 16.1 DU pour $C12$ et 26.3 DU pour $C16$. Il faut cependant considérer ces chiffres avec prudence : le nombre de mesures comparées étant en moyenne inférieur à 4, la comparaison n’est pas statistiquement fiable. En particulier, une étude de corrélation n’est pas réalisable et la variabilité temporelle des inversions ne peut pas être testée. Nous pouvons d’autre part remarquer que certaines mesures IMG, conservées pour l’algorithme troposphérique, ont été filtrées pour l’algo-

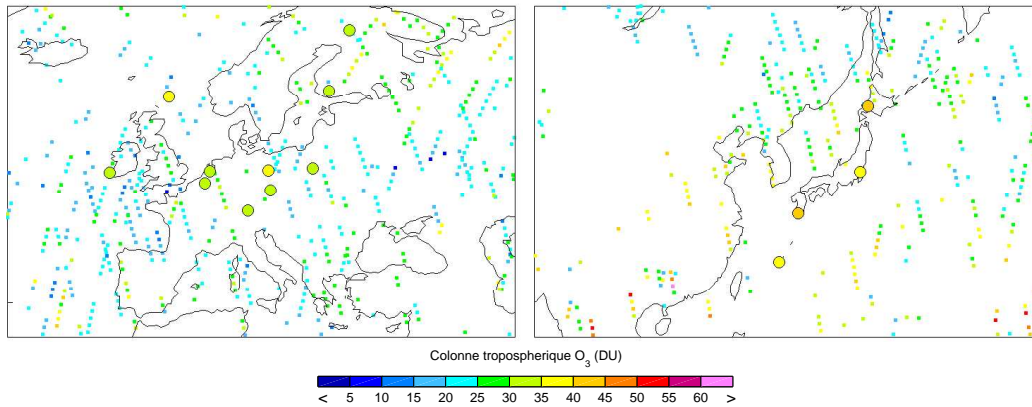


FIG. 6.21 – Distribution des colonnes troposphériques IMG (mesures disponibles pour la période 1-10/04/1997) et sondes (moyennes sur la période 1-10/04/1997).

rythme opérationnel : c'est le cas des mesures autour de Churchill (077), de Lerwick (043) et de Wallops Island (107). Même si les algorithmes ont leur propre sensibilité, liée au processus d'apprentissage, les inversions IMG pour ces localisations seront certainement moins fiables.

Nous allons maintenant nous concentrer sur les deux régions pour lesquelles les nombres de stations sont les plus importants : l'Europe et le Japon. La figure 6.21 présente les distributions de colonne troposphérique de O_3 pour les deux régions et la période du 1^{er} au 10 avril 1997. Nous comparons ici les colonnes partielles inversées à partir des mesures IMG sans les moyenner avec les valeurs moyennes obtenues à partir des profils sondes. Nous pouvons d'une part remarquer la forte variabilité des quantités d' O_3 troposphérique, et d'autre part observer la distance importante entre les traces IMG et les stations sondes.

Compte tenu de l'importante variabilité de l'ozone dans les premières couches de l'atmosphère, une comparaison plus précise des colonnes partielles inversées et calculées à partir des profils sondes peut-être réalisée en se basant à la fois sur les valeurs moyennes et sur les écarts-types. Ces derniers permettent de prendre en compte la variabilité des grandeurs comparées. Cette comparaison est représentée pour chaque station sur les figures 6.22, 6.23, 6.24 et 6.25. Afin de faciliter l'interprétation des écarts obtenus, les profils de concentration d'ozone mesurés à différentes stations sont représentés sur les figures 6.26 et 6.27.

Les colonnes troposphériques calculées pour les mesures des stations de Churchill (077), Naylesund (089), Lauder (256), Prague (242) et Jokioinen (404) présentent de très fortes variabilités. Les profils mesurés à Lauder et Prague sont représentés sur les figures 6.26 et 6.27. À ces stations, de très fortes variations des concentrations d'ozone ont été mesurées. Elles sont majoritairement dues à des intrusions d'air troposphérique dans la basse stratosphère au niveau des jet subtropicaux [Kowol-Santen and Ancellet, 2000; Bradshaw et al., 2002], bien que des filaments d'air polaire puissent également entraîner des discontinuités dans les profils observés [Marchand et al., 2003]. Des signatures de ce type sont observées quasiment à toutes les stations de moyennes latitudes, dans l'hémisphère nord mais également dans l'hémisphère sud. Des intrusions d'air stratosphérique peuvent

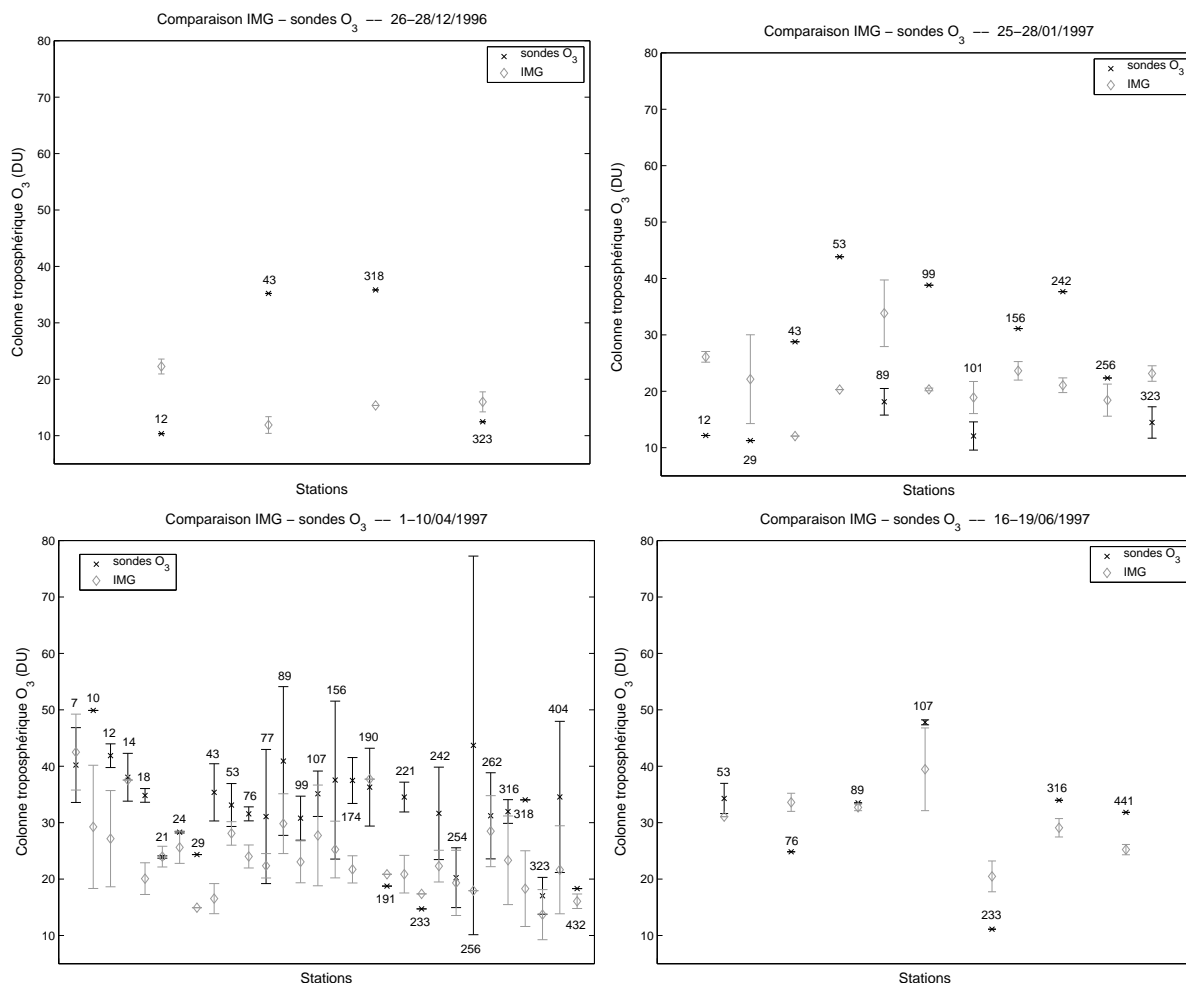


FIG. 6.22 – Valeurs moyennes et écarts types des colonnes troposphériques observées aux différentes stations pendant les périodes considérées, et des colonnes inversées à partir des mesures IMG co-localisées à $\pm 2.5^\circ$ pour les différentes périodes IMG.

également augmenter la variabilité dans la troposphère libre. Cela pourrait expliquer le pic d'ozone autour de 10 km d'altitude observé à la station de Wallops Island (107). Une étude plus détaillée serait nécessaire afin de déterminer précisément l'origine de ces fortes variabilités. Pour tous ces cas, la tropopause est difficile à déterminer et l'utilisation de la définition thermique implique que des concentrations d'ozone plutôt caractéristiques de la stratosphère peuvent être prises en compte dans le calcul de la colonne troposphérique [Logan, 1999], expliquant la forte variabilité sur ces colonnes.

Ces variabilités importantes se retrouvent sur les colonnes C12 et C16 puisque les concentrations d'ozone dans la haute troposphère et basse stratosphère ont une forte contribution. Les valeurs de C6, situées dans la troposphère, ne sont, en revanche, pas affectées. Le biais calculé pour ces situations est généralement important, mais les mesures IMG se trouvent souvent dans la barre de variabilité des mesures sondes. À Edmonton (021), MacQuarie (029) ou Goose Bay (076), une plus forte différence est observée pour C16 que pour les autres colonnes partielles car les variations de concentration d'ozone sont surtout importantes au-dessus de 9-10 km d'altitude. Dans ces cas, C16 a tendance

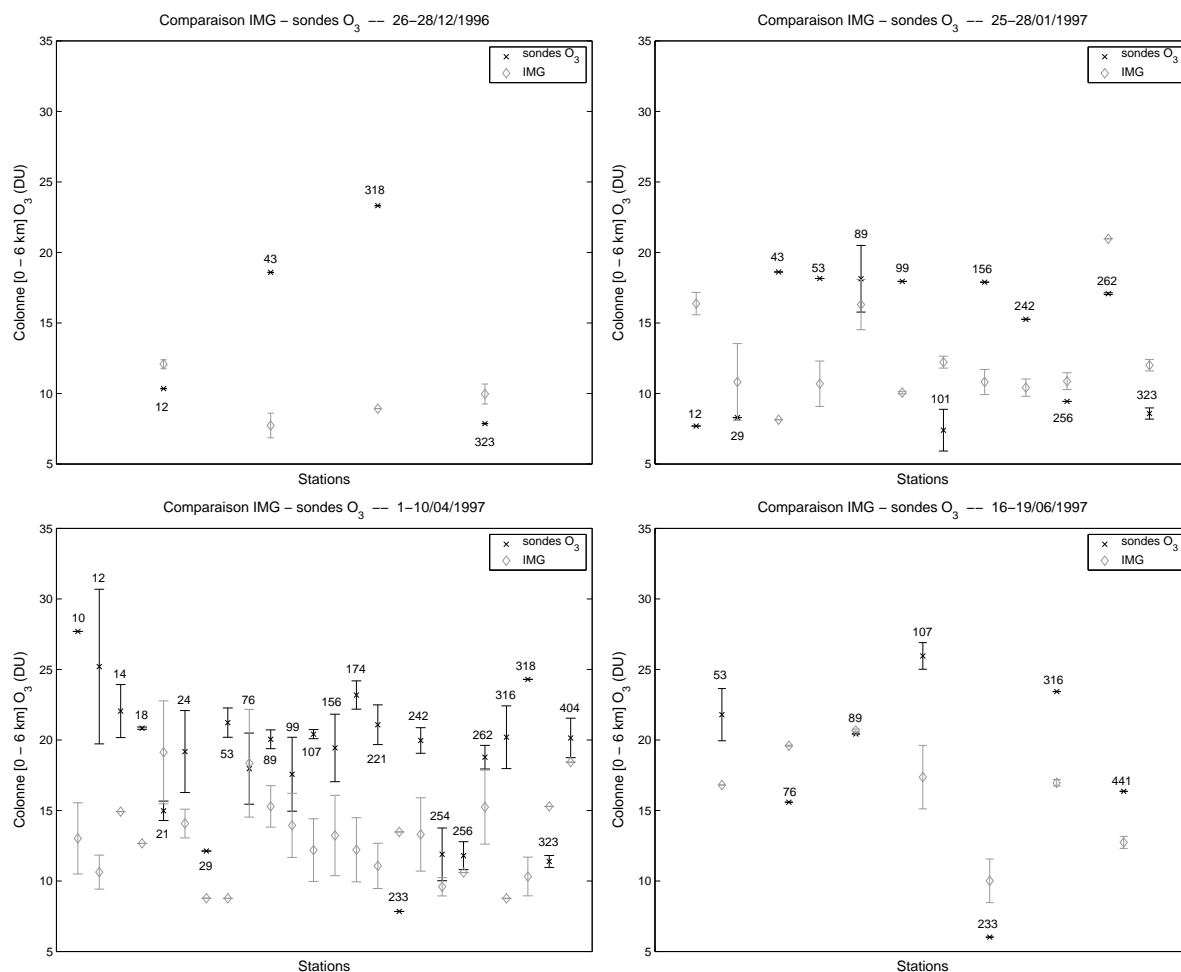


FIG. 6.23 – Même chose que sur le figure 6.22 mais pour la colonne $[0-6\text{km}]$ d'ozone C6.

à être sur-estimée par IMG : la diminution de la quantité d'ozone stratosphérique semble mal détectée.

Nous pouvons d'autre part remarquer une tendance marquée de IMG à sous-estimer les colonnes C_{tropo} , $C6$, $C12$ et, dans une moindre mesure, $C16$ pour les stations de moyennes latitudes de l'hémisphère nord. Cette sous-estimation est particulièrement visible au-dessus des stations de New-Dehli (010), de Saporro (012), de l'est de l'Europe (099, 174, 221, 242) et de l'ouest de l'Europe (043, 053 et 318). D'après les profils sonde (figures 6.26 et 6.27), les mesures aux moyennes latitudes présentent généralement de fortes concentrations d'ozone dans la couche limite et dans la troposphère libre, avec de très fortes variations des profils d'un jour à l'autre.

La forte sous-estimation des colonnes IMG par rapport aux mesures sondes peut donc provenir en grande partie de la plus faible sensibilité de l'instrument IMG aux premières couches de l'atmosphère. Des pics d'ozone à des altitudes inférieures à 2-3 km d'altitude seront sous-estimés par l'inversion IMG. Cet effet est particulièrement visible pour les colonnes $C6$, pour lesquelles les premières couches contribuent de façon prépondérante. Cette hypothèse est en accord avec la meilleure comparaison dans les régions de faibles émissions de précurseurs, pour lesquelles la concentration d'ozone dans les premières couches

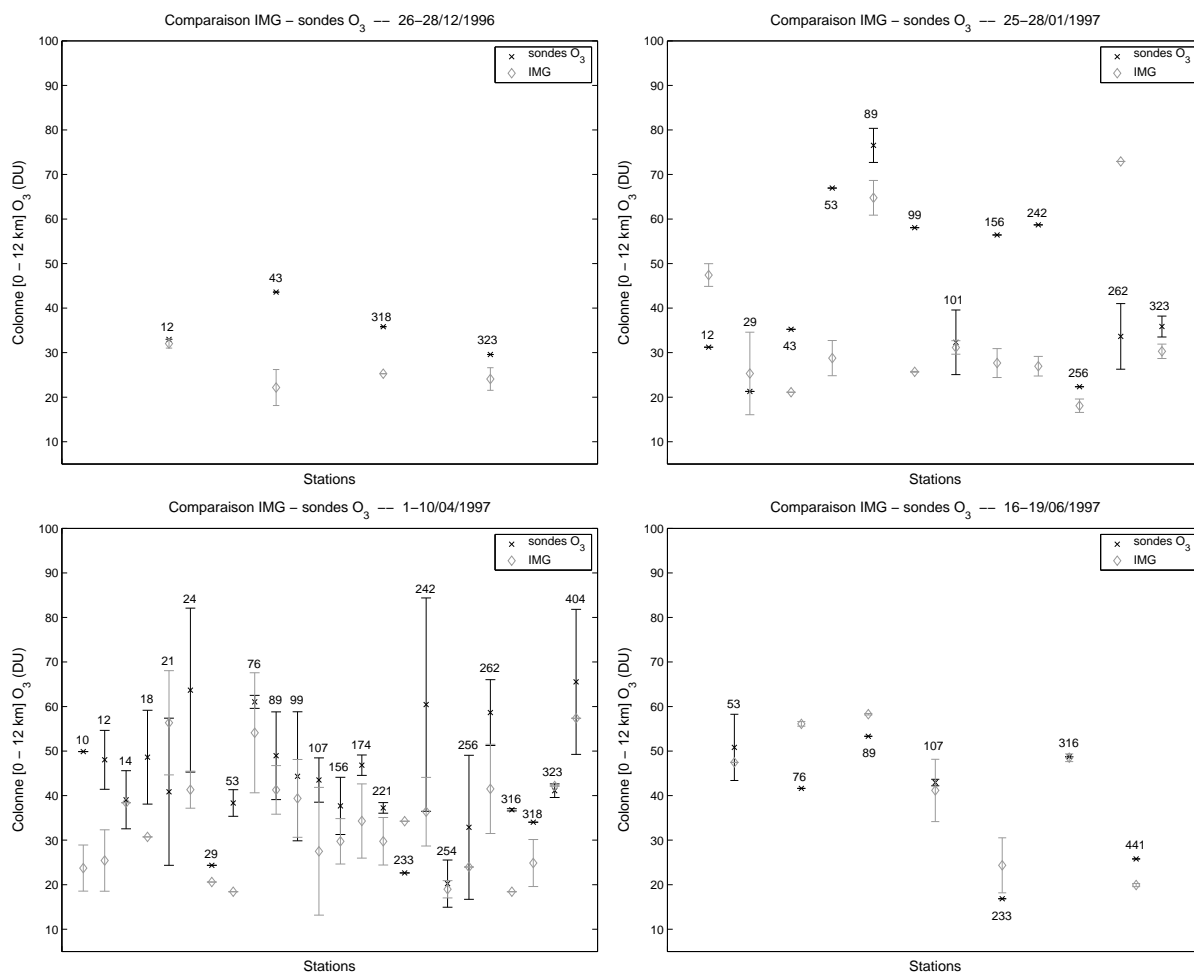


FIG. 6.24 – Même chose que sur le figure 6.22 mais pour la colonne [0-12km] d’ozone C12.

de l’atmosphère est généralement faible.

La sous-estimation peut également être attribuée à l’ensemble d’apprentissage, réalisé à partir des profils d’ozone issus du modèle global MOZART. La grille de ce modèle, de $2.8^\circ \times 2.8^\circ$, est en effet trop large pour représenter des profils extrêmement pollués caractéristiques des zones urbaines. Les cas considérés pour l’apprentissage seront donc lissés et moins pollués localement, impliquant un biais sur les inversions.

À l’inverse, les colonnes sont légèrement sur-estimées aux stations situées en Antarctique (101, 233, 323), où de faibles concentrations troposphériques sont observées (voir le profil mesuré à Marambio (233) sur la figure 6.27). La sur-estimation des faibles colonnes peut provenir de la faible représentation de ces cas dans l’ensemble d’apprentissage et de la contribution des couches plus élevées de l’atmosphère. En effet, la résolution verticale des mesures de type IASI est estimée à environ 8-10 km et ne permet donc pas de découpler précisément les différentes couches de l’atmosphère (comme le montrent les noyaux caractérisant la sensibilité des inversions).

Tout comme pour la comparaison entre les colonnes TOMS et IMG, il faut d’autre part préciser que certains cas nuageux, pour lesquels l’inversion ne représente pas les quantités recherchées, peuvent être conservés après application des filtres de qualité.

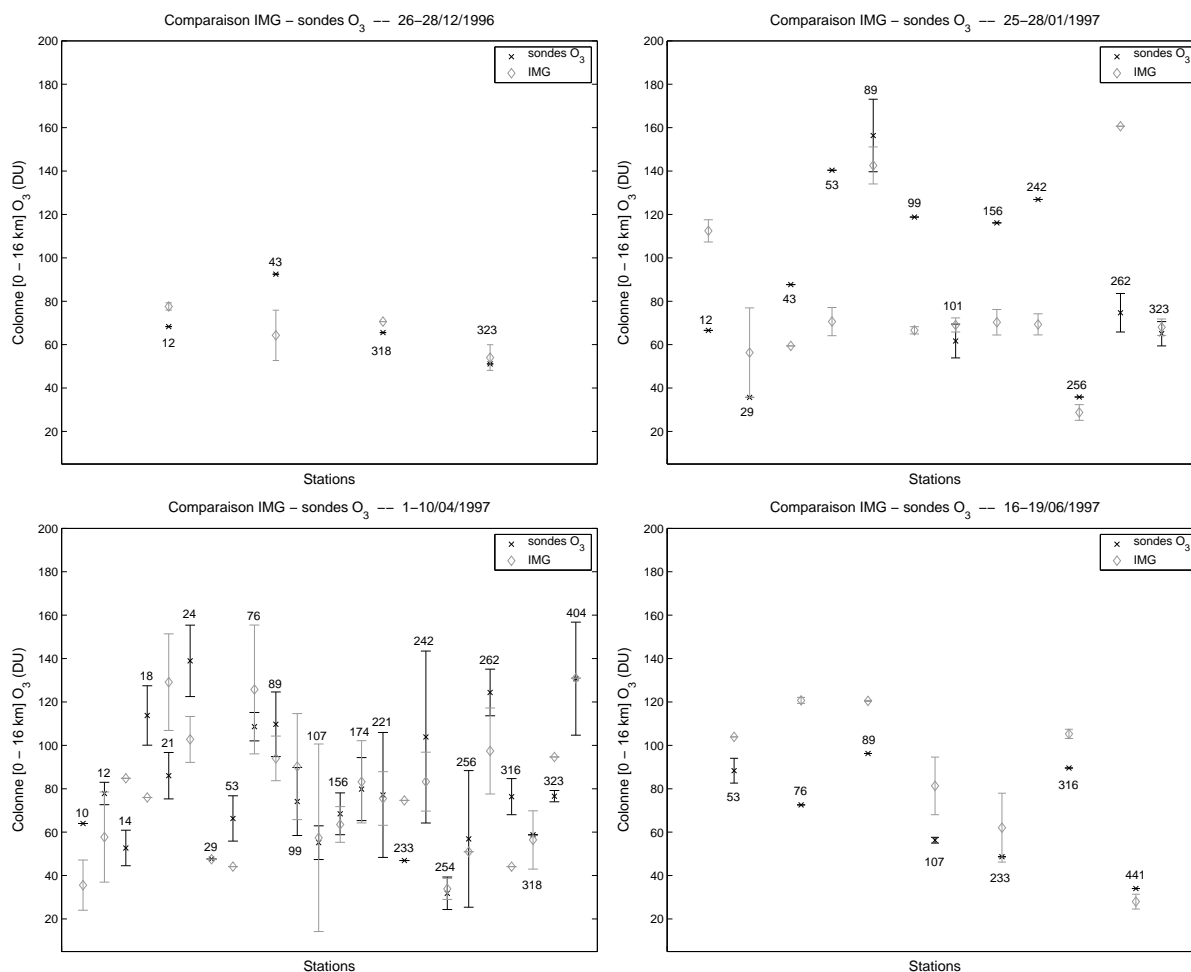


FIG. 6.25 – Même chose que sur le figure 6.22 mais pour la colonne [0-16km] d'ozone C16.

Dans les régions de fortes variabilités, la mauvaise co-localisation spatio-temporelle des mesures sondes avec les mesures IMG pourra donc entraîner de grandes différences entre les colonnes comparées.

Un grand nombre de facteurs expliquent donc les différences obtenues. Les colonnes troposphériques et partielles inversées par IMG sont affectées par la faible sensibilité de l'instrument aux premiers niveaux de l'atmosphère et par la représentativité des profils utilisés lors de la phase d'apprentissage de l'algorithme d'inversion, issus d'un modèle global et de climatologies. La difficulté de l'algorithme à découpler l'influence des différents niveaux verticaux, liée à la résolution verticale limitée de l'instrument, pourrait également expliquer la plus grande difficulté dans les régions de forte variabilité du profil d'ozone (moyennes latitudes de l'hémisphère nord principalement). La variabilité temporelle représentée par les mesures IMG inversées n'a pas pu être testée car une comparaison en fonction du temps est rendue impossible par les courtes périodes IMG considérées et sa couverture spatiale relativement faible.

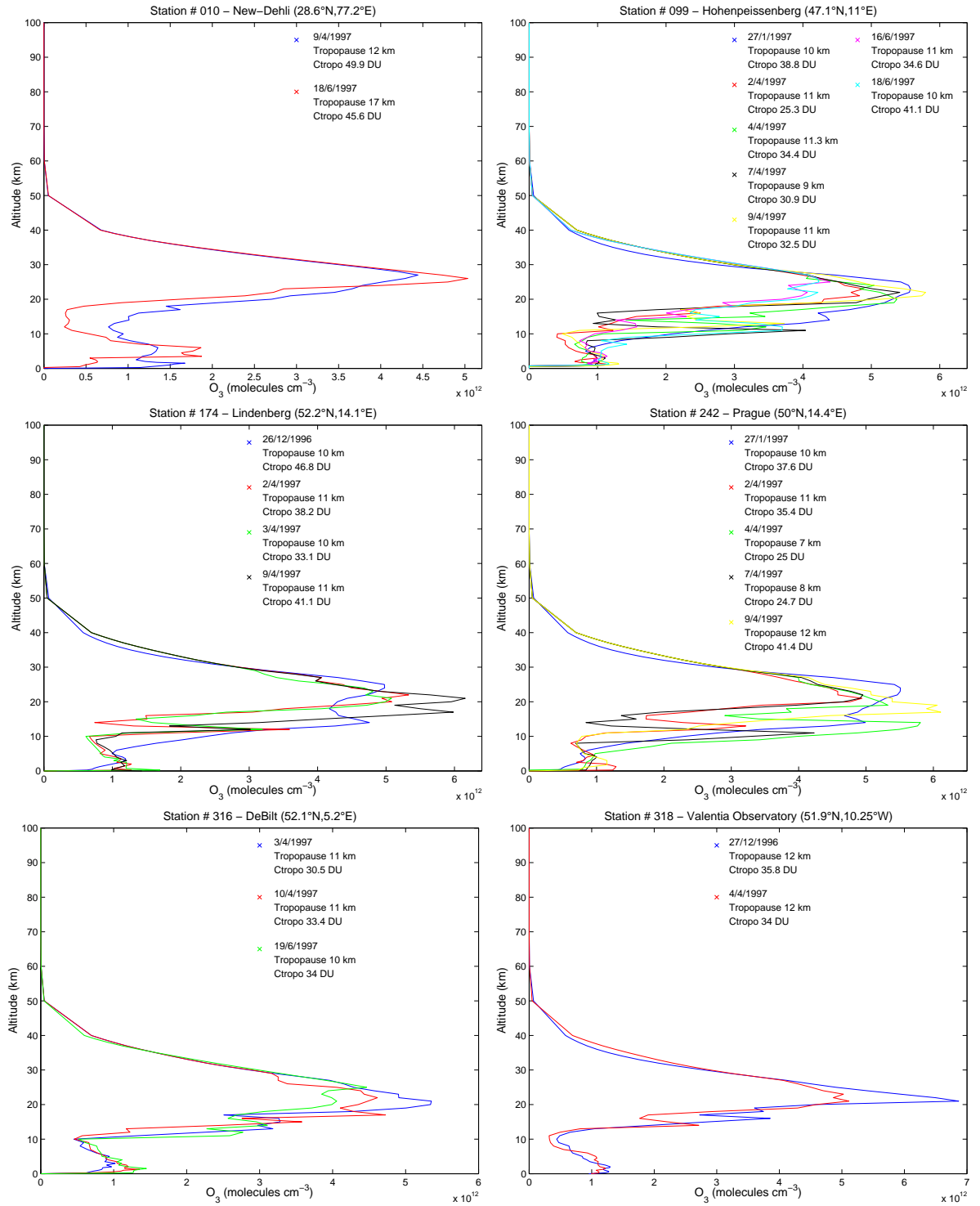


FIG. 6.26 – Profils d'ozone mesurés à différentes stations pendant les périodes de mesure IMG étudiées : 26-28/12/1996, 25-28/01/1997, 1-10/04/1997 et 16-19/06/1997.

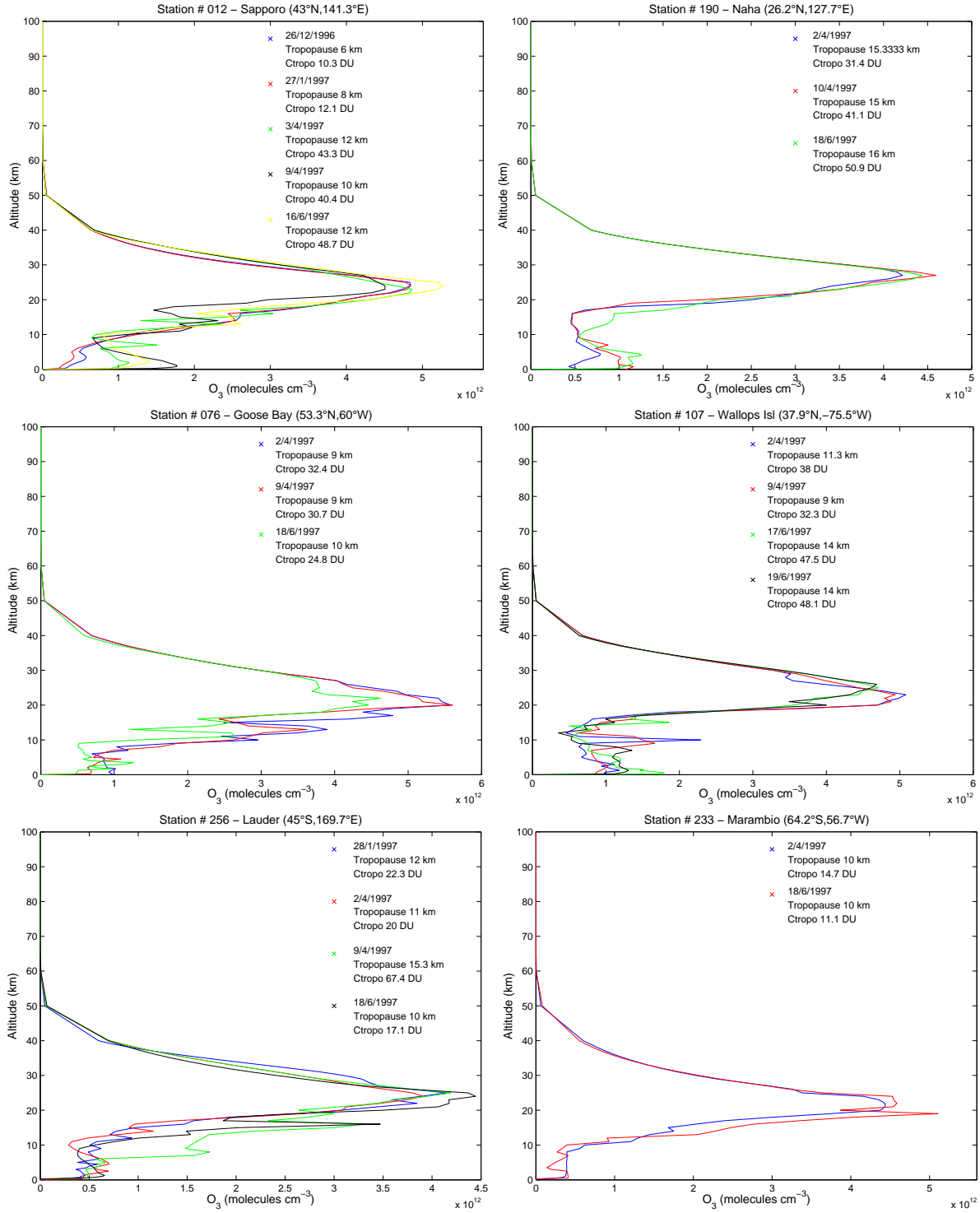


FIG. 6.27 – (suite de la figure 6.26)

Comparaison IMG-sondes tenant compte du système d'observation

Pour une comparaison plus fiable, les caractéristiques de l'instrument et de l'algorithme d'inversion doivent être prises en compte [Rodgers and Connor, 2003]. Pour cela, le système d'observation est simulé de deux manières :

1. en simulant une mesure de type IASI à partir des mesures sondes de pression, température et d'ozone, en la bruitant, puis en appliquant l'algorithme d'inversion à ces simulations ;
2. en utilisant le formalisme de caractérisation linéaire de Rodgers [2000], permettant, pour chaque mesure sonde, de calculer une colonne intégrée tenant compte des sensibilités et informations *a priori* caractérisant les inversion en utilisant l'équation 5.14. Ainsi, en omettant les erreurs d'inversion, on obtient une estimation des colonnes sondes telles qu'elles seraient restituées par le système d'observation :

$$\hat{\mathbf{c}}_{sonde} = \mathbf{A}\mathbf{x}_{sonde} + (\mathbf{C} - \mathbf{A})\mathbf{x}_a$$

où \mathbf{C} représente l'opérateur colonne permettant de calculer la colonne désirée à partir du profil d'ozone mesuré et où \mathbf{A} et \mathbf{x}_a représentent le noyau et l'information *a priori* associés à la mesure IMG co-localisée (dans une région de $\pm 2.5^\circ$ en longitude et latitude). Dans notre cas, les caractéristiques des inversions ont été estimées pour IMG (caractéristiques IMG et RN) en considérant un ensemble de situations représentatives de l'ensemble d'apprentissage issues d'une classification (parties 5.6 et 6.1.4).

La première méthode est plus précise que la seconde, même si elle ne tient pas compte d'éventuels problèmes de simulation du transfert radiatif, mais est également difficile à appliquer de manière systématique compte tenu du temps de calcul important requis pour la simulation des spectres.

La figure 6.28 représente la nouvelle comparaison entre les colonnes sondes et *Ctrops* IMG pour la colonne troposphérique d'ozone en avril 1997. La prise en compte du système d'observation permet globalement d'atténuer les différences entre les colonnes sondes et les colonnes IMG restituées, en particulier lorsque la première méthode est utilisée. La comparaison des colonnes sondes intégrées aux colonnes restituées par le RN pour les profils sondes met en particulier en évidence la forte sous-estimation des colonnes liée au système d'observation, confirmant les conclusions du paragraphe précédent.

L'utilisation du noyau (méthode 2) permet également d'améliorer la comparaison sondes/IMG. En particulier, la sous-estimation des colonnes aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord est moins marquée. C'est le cas pour les stations européennes (sauf Prague, 242, et moins clair pour Uccle, 053), japonaises et pour la station de Wallops Island (107). Pour la station de New-Dehli (010), l'utilisation du noyau ne semble pas améliorer significativement la comparaison. Aux moyennes latitudes de l'hémisphère sud, la nouvelle colonne sonde s'éloigne de la colonne IMG à Laverton (254) mais se rapproche à Lauder (256). Aux plus hautes latitudes des deux hémisphères (hormis aux stations de Jokioinen, 404, de Churchill, 077, et de Marambio, 233), la méthode semble moins adaptée : l'utilisation du noyau a plutôt tendance à augmenter la colonne sonde plutôt qu'à la diminuer pour la rapprocher de IMG.

Les profils *a priori* et les noyaux utilisés pour le calcul de $\hat{\mathbf{c}}_{sonde}$ pour quelques exemples d'avril 1997 (inversion de la colonne *Ctrops* toujours) sont représentés sur la figure 6.29.

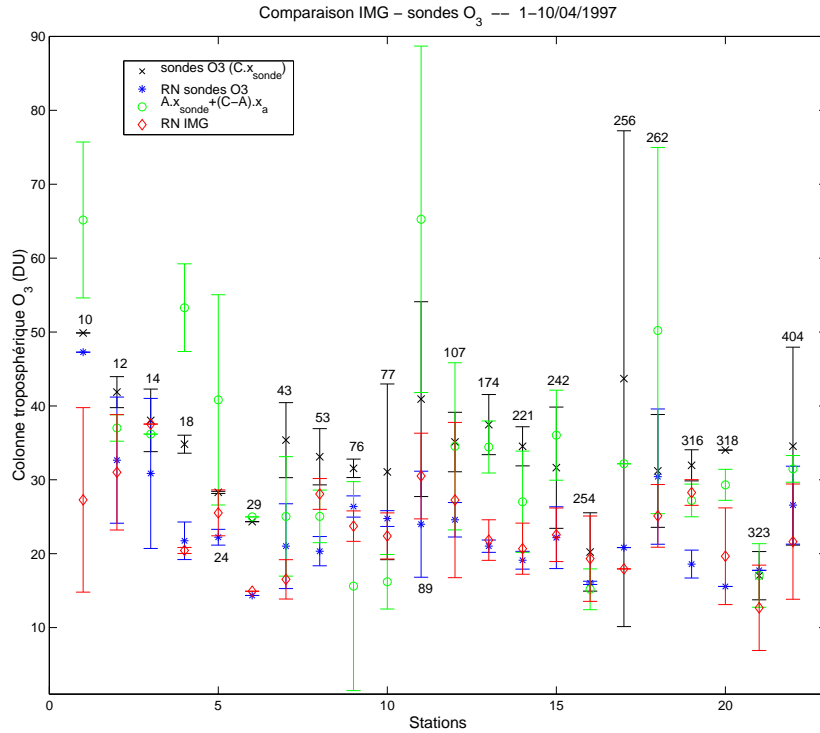


FIG. 6.28 – Valeurs moyennes et écarts types des colonnes troposphériques observées aux différentes stations pendant les périodes de mesure IMG considérées, et des colonnes inversées à partir de IMG co-localisées à $\pm 2.5^\circ$ pour les différentes périodes IMG. Les colonnes troposphériques sondes sont calculées d'une part en intégrant les profils mesurés par les sondes entre la surface et l'altitude de la tropopause ($C \mathbf{x}_{sonde}$) et d'autre part en appliquant le RN au spectre IR simulé à partir des profils sondes ou en appliquant le noyau caractérisant l'inversion aux profils sondes ($A \mathbf{x}_{sonde} + (I - C) \mathbf{x}_a$).

Dans le cas de New-Dehli, le profil *a priori* choisi (parmi les profils considérés dans la classification) est proche du profil sonde dans la stratosphère et l'altitude de la tropopause est bien estimée mais les concentrations troposphériques sont fortement sous-estimées. L'amplitude du noyau dépasse ici 1 dans la troposphère, ce qui donne un poids important au profil sonde et n'améliore donc pas la comparaison. À Prague (242), la forte variabilité des profils sonde se retrouve dans les profils *a priori* choisis et dans les noyaux correspondants calculés. Les profils *a priori* choisis ont une tropopause trop haute, qui correspond plutôt à l'altitude des masses d'air stratosphériques pauvres en ozone (d'origine troposphérique). Cette difficulté à associer un profil correct peut être due au manque d'information dans les spectres. La comparaison n'est donc pas améliorée par l'utilisation du noyau. À Lauder (256), un seul profil *a priori* et un seul noyau sont utilisés pour convoluer les profils d'ozone. La variabilité initiale est donc fortement lissée, et la colonne se rapproche de la colonne mesurée par IMG. À Alert (018), comme pour beaucoup de stations de haute latitude, le profil *a priori* sélectionné n'est pas correct. Dans ces cas-là, la classification devra être améliorée. L'erreur de lissage est d'autre part très importante pour les inversions IMG correspondantes (peu de sensibilité aux mesures), ce qui met en évidence la difficulté de l'algorithme à traiter ces situations.

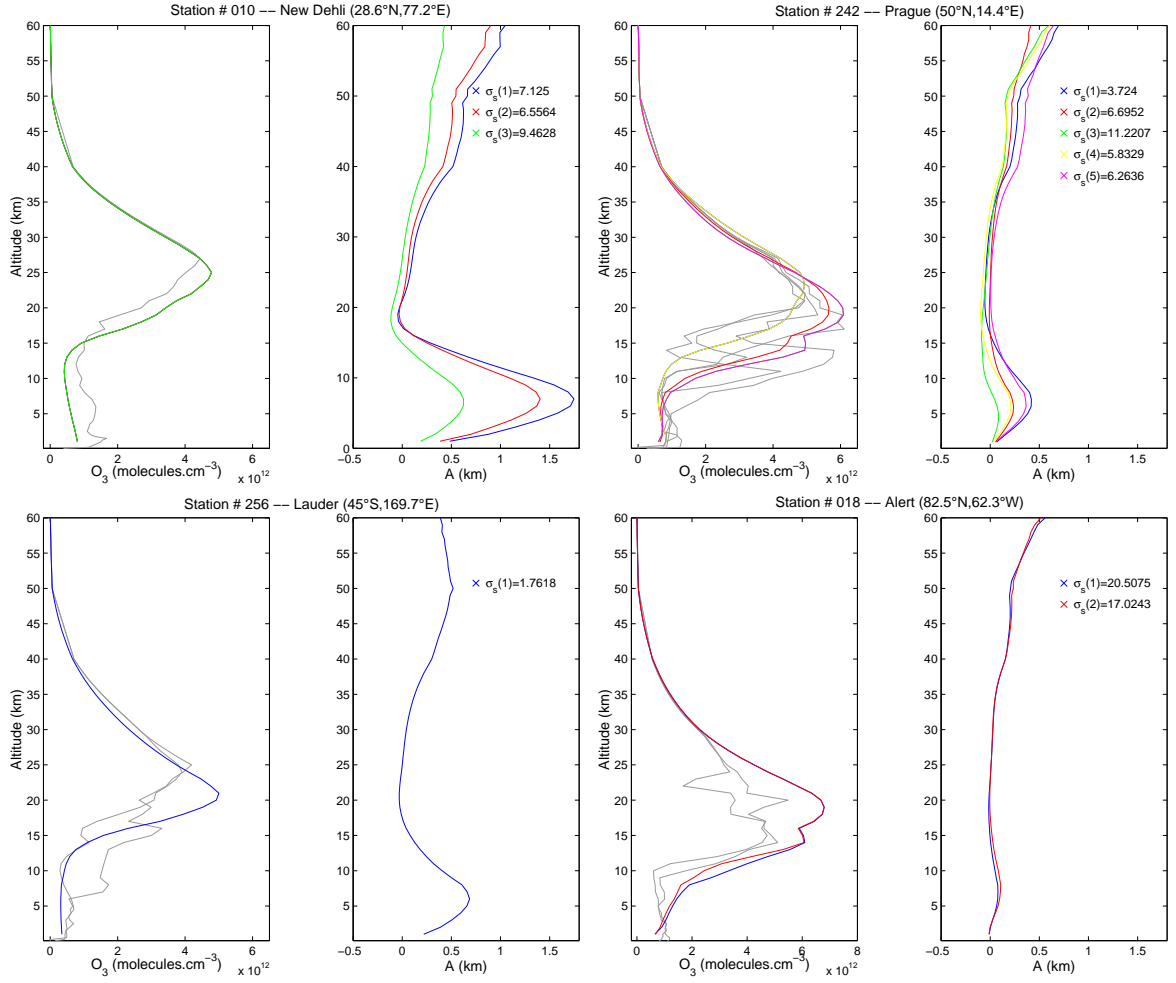


FIG. 6.29 — Profils d’ozone mesurés à différentes stations pendant la périodes 1-10/04/1997 à différentes stations (en gris à gauche) et profils a priori (en couleurs à gauche) et noyaux (à droite) utilisés pour l’inversion de mesures IMG co-localisées à $\pm 2.5^\circ$.

Ainsi, la méthode utilisée pour le calcul de \hat{c}_{sonde} , c’est-à-dire l’équation 5.14, n’est pas toujours représentative du comportement du RN. Il est en effet difficile d’estimer la manière dont le RN utilise l’information a priori fournie lors de l’apprentissage. Cette méthode comporte en particulier beaucoup moins de degrés de liberté que le RN. D’autre part, la connaissance acquise par le RN au cours de l’apprentissage intervient de manière globale sur les résultats de l’inversion, et pas seulement dans les couches où l’instrument est le moins sensible.

Il n’est donc pas clair que l’utilisation du noyau améliore réellement les comparaisons, et il est préférable d’utiliser une simulation complète du système d’observation pour tenir compte des sensibilités. La classification permet toutefois souvent d’estimer un profil d’ozone proche de la réalité.

6.2.3 Colonnes troposphériques TOMS

Malgré sa faible sensibilité aux premières couches de l'atmosphère, différentes méthodes ont été développées afin de déduire des quantités troposphériques à partir des mesures de l'instrument TOMS. Elles reposent toutes sur l'évaluation de la contribution de l'ozone stratosphérique à la colonne totale mesurée par TOMS, qui permet ensuite la déduction de la colonne troposphérique.

La méthode du résidu, développée initialement par Fishman et ses collaborateurs [Fishman et al., 1990; Fishman et al., 1991; Fishman and Brakett, 1997] en utilisant les mesures de l'instrument SAGE (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment) afin de dériver de manière indépendante la contribution de l'ozone stratosphérique, permet une estimation globale (*i.e.* sur l'ensemble du globe) de la colonne troposphérique. Le principal problème de cette méthode provient du manque de cohérence (spatiale et temporelle) des mesures qui sont effectuées par des instruments embarqués sur différentes plate-formes et qui n'ont pas été inter-calibrés. L'utilisation des mesures de l'instrument SBUV (Solar Backscattered UltraViolet), mieux distribuées que celles de SAGE, associées à des mesures sondes, permet d'étudier des échelles spatio-temporelles plus petites [Fishman and Balok, 1999; Fishman et al., 2003]. Plus récemment, les mesures fournies par MLS (Microwave Limb Sounder) ont été utilisées [Chandra et al., 2003] afin d'estimer la colonne d'ozone stratosphérique, permettant l'inversion de distributions troposphériques bien résolues.

La méthode du résidu modifié (Modified Residual, MR) [Hudson et al., 1995; Hudson and Thompson, 1998] est basée sur le concept d'une colonne stratosphérique peu variable dans les tropiques et d'une colonne troposphérique plus variable, qui suit la variation de la colonne totale. Elle permet d'estimer une distribution de la colonne troposphérique tropicale d'ozone (TTO). Elle utilise pour cela des mesures sondes et l'approximation d'une structure ondulatoire (nombre d'onde égal à 1) des colonnes troposphériques d'O₃ afin de déterminer une colonne troposphérique d'ozone de fond, correspondant à une quantité d'ozone attendue en l'absence de pollution photochimique. La soustraction de

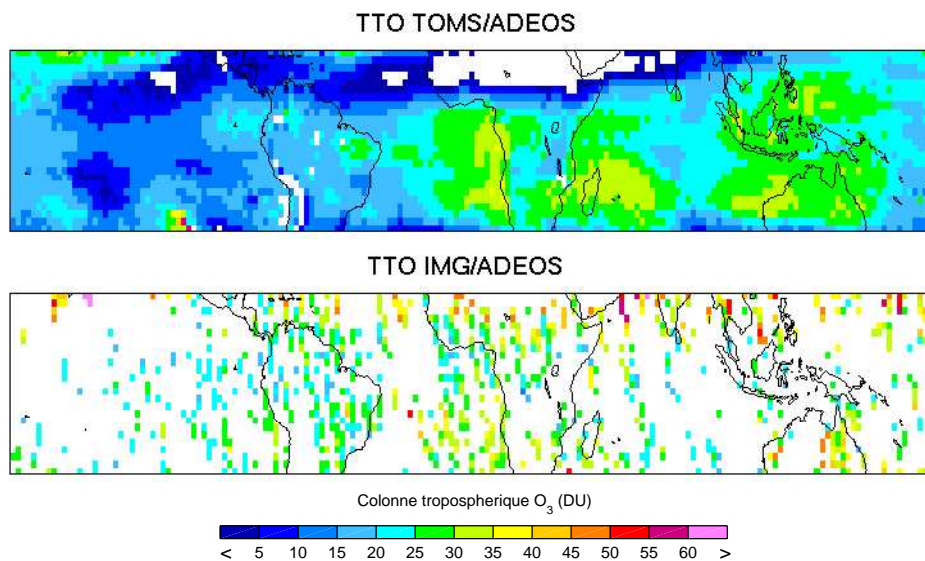


FIG. 6.30 – Distribution des colonnes troposphériques IMG et TOMS (moyenne sur 9 jours).

ces colonnes troposphériques de fond aux colonnes totales TOMS permet de déduire les colonnes stratosphériques correspondantes, puis les colonnes troposphériques complètes en soustrayant les colonnes stratosphériques aux colonnes totales TOMS. Une précision de 5 DU environ est ainsi atteinte sur l'estimation de la TTO [Hudson and Thompson, 1998].

D'autres méthodes n'utilisant que les mesures TOMS ont été développées pour déterminer la TTO. La méthode différentielle des nuages convectifs (CCD, Convective Cloud Differential) [Ziemke et al., 1998] utilise les mesures correspondant à des scènes de très haute réflectivité au-dessus des régions fortement convectives du Pacifique tropical pour déterminer la colonne stratosphérique d'ozone en fonction de la latitude. Celle-ci est ensuite supposée zonalement invariante entre $+15^\circ$ et -15° de latitude et les colonnes troposphériques sont déduites dans cette bande de latitude en soustrayant la colonne stratosphérique des mesures TOMS pour les cas de faible réflectivité. Cette méthode a été étendue à une méthode de découpage nuageux où l'information sur la hauteur des nuages est utilisée pour séparer les colonnes troposphériques en-dessus et au-dessous de 400 hPa [Ziemke et al., 2001], et a permis l'étude de la colonne d'ozone dans la haute troposphère (entre 200 et 500 hPa) pour des latitudes variant de 60°S à 60°N [Ziemke et al., 2003].

L'angle de visée a également été utilisé par Kim et al. [2001] afin de découpler les colonnes stratosphériques des colonnes troposphériques à partir des mesures TOMS. Cette méthode utilise donc une approche différente de celles précédemment citées puisqu'elle n'utilise pas la colonne totale dérivée de TOMS mais les mesures TOMS directement. Le calcul est ici limité aux régions tropicales.

Une comparaison des résultats des différentes techniques a été réalisée par Newchurch et al. [2001] et Martin et al. [2002a]. Des différences significatives, allant jusqu'à 10–20 DU sont observées. Pour toutes les estimations, la faible sensibilité de TOMS aux premières couches de l'atmosphère entraîne une sous-estimation des colonnes troposphériques lorsque la quantité d'ozone dans la basse troposphère est importante et une sur-estimation lorsque cette quantité est faible. Cependant, des résultats scientifiques importants ont pu être déduits des colonnes troposphériques d' O_3 dérivées de TOMS, tels que l'importance des feux de biomasse dans le bilan de l' O_3 tropical [Fishman et al., 1990], la présence d'un signal dû à El Niño [Chandra et al., 1998; Thompson et al., 1999], d'un forçage du cycle solaire [Chandra et al., 1999] ou l'identification de l'influence des éclairs sur les distributions [Martin et al., 2000].

Nous n'allons pas ici comparer les colonnes troposphériques inversées à partir des mesures IMG/ADEOS à toutes les mesures TOMS existantes : nous limiterons notre étude aux colonnes déduites des mesures TOMS/ADEOS en utilisant les résultats de la méthode du résidu modifié [Hudson and Thompson, 1998]. Pour ces dernières, nous ne disposons que des moyennes sur 3 jours ou 9 jours. Seule la période 1-10 avril 1997 présente suffisamment de mesures dans les tropiques pour permettre une comparaison utile. Nous avons donc comparé les TTO IMG et TOMS pour la période 1-9 avril 1997, dont les distributions sont représentées sur la figure 6.30. Les distributions IMG et TOMS ont été rééchantillonnées sur une grille $2^\circ \times 2^\circ$ et les données IMG ont été moyennées sur les 9 jours considérés. Compte tenu de la mauvaise couverture IMG, cette moyenne ne correspond souvent qu'à un seul jour de mesure et la distribution résultante est donc plutôt un composite des données disponibles qu'une moyenne. La faible couverture spatio-temporelle IMG, fortement réduite par les filtres de qualité appliqués, rend donc difficile la comparaison statistique des distributions.

La distribution des colonnes troposphériques TOMS est caractérisée par une structure

de nombre d'onde égal à 1, avec un maximum d' O_3 au-dessus de l'océan Atlantique au sud-ouest de l'Afrique (qui s'étend jusqu'au nord de l'Amérique du Sud) et un minimum d' O_3 au-dessus de l'océan Pacifique. De fortes colonnes sont également atteintes au-dessus du sud-est de l'Afrique et de Madagascar, de l'Indonésie et de l'Australie. Des colonnes particulièrement faibles sont d'autre part obtenues au-dessus de l'Afrique centrale et de l'Inde.

Pour IMG, les maxima sont observés au-dessus de l'Afrique centrale et de l'Asie du Sud-Est, avec de fortes valeurs au-dessus du sud-ouest de l'Afrique, du sud-est de l'Atlantique, et de l'Australie. Des colonnes relativement importantes sont également observées au-dessus de l'Amérique du Sud et du sud-est du Pacifique. D'importantes différences sont donc observées entre les distributions obtenues à partir des deux instruments spatiaux considérés. Bien que les inversion aient été filtrées, la colonne *Ctropo* IMG semble sur-estimée au-dessus de certaines régions. Plus localement, pour quelques points au-dessus de l'Atlantique tropical par exemple, les fortes colonnes ne paraissent pas réalistes. Ces cas pourraient être liés à la présence de nuages non filtrés ou à des problèmes instrumentaux. Les inversions IMG au-dessus des régions désertiques de l'Afrique du Nord et de l'Australie sont également à considérer avec précautions car l'algorithme d'inversion n'est pas adapté au traitement des émissivités de surface extrêmes.

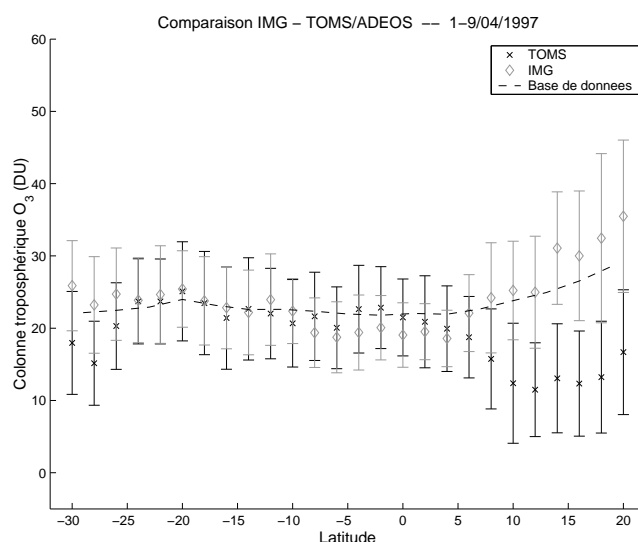


FIG. 6.31 – Colonnes troposphériques d'ozone obtenues pour TOMS, IMG et l'ensemble d'apprentissage, moyennées sur des bandes de latitude de 1° (valeurs moyennes et déviations standard associées).

La comparaison des moyennes latitudinales, représentée sur la figure 6.31, met également en évidence la très nette sur-estimation des colonnes IMG par rapport à TOMS pour des latitudes supérieures à $10^\circ N$ environ et inférieures à $25^\circ S$ environ. Pour les latitudes intermédiaires, les ordres de grandeur et les variabilités sont comparables, avec cependant une légère sur-estimation des colonnes TOMS par rapport à IMG.

L'écart le plus visible entre les deux distributions est localisé au-dessus de l'Afrique centrale. De nombreux travaux ont porté sur l'étude des colonnes troposphériques TOMS observées dans cette région, plus particulièrement sur ce "paradoxe Atlantique" apparent

[Thompson *et al.*, 2000; Thompson *et al.*, 2001] : pourquoi le maximum d'O₃ est-il observé dans l'hémisphère sud (au sud de la zone de convergence inter-tropicale) alors que la principale source de précurseurs de l'ozone dans cette région, le brûlage de la biomasse en Afrique centrale, se situe au nord de cette zone ? Il peut s'expliquer à la fois par une source de précurseurs de l'ozone dans l'hémisphère sud, les éclairs, nombreux au-dessus du sud de l'Afrique et de l'Amérique du Sud, par un transport inter-hémisphérique des précurseurs de l'ozone au travers de la zone de convergence, mais aussi par le manque de sensibilité de l'instrument TOMS aux premières couches de l'atmosphère [Martin *et al.*, 2002a; Edwards *et al.*, 2003]. D'après ces études, deux maxima d'O₃ troposphérique devraient être observés : l'un au-dessus des régions de feux de végétation, dans l'hémisphère nord, localisé dans la basse troposphère, et l'autre au-dessus de l'Atlantique tropical, localisé dans la moyenne troposphère, qui résulte de la production d'oxydes d'azote par les éclairs.

La distribution *Ctropo* IMG semble en bon accord avec cette description, même si les colonnes obtenues au-dessus de l'Afrique du Nord sont probablement sur-estimées (problèmes de prise en compte de l'émissivité de surface). Ainsi, même en dégradant les spectres correspondants jusqu'à la résolution spectrale de IASI, l'instrument IMG pourrait être mieux adapté à l'observation de l'ozone dans la basse troposphère. Cette meilleure estimation peut également provenir d'une information *a priori* plus complète pour la méthode d'inversion par réseaux de neurone (méthode globale) que pour l'algorithme TOMS. Le manque de sensibilité de IMG serait corrigé par une information plus représentative afin d'estimer une colonne d'ozone proche de la réalité. Là encore, une comparaison directe ne permet pas d'estimer l'impact de l'*a priori* utilisé [Rodgers, 2000].

Les distributions d'ozone troposphérique inversées à partir de IMG seront analysées dans le chapitre 7 afin de mieux comprendre les différents processus en jeu.

Afin de comparer de manière plus générale les performances atteintes en utilisant les méthodes indirectes d'estimation à partir des observations UV-visible TOMS et notre méthode d'inversion directe des mesures IR, les résultats de validation par rapport à des mesures sondes sont présentées dans le tableau 6.5. La plupart des mesures sondes co-localisées aux mesures IMG correspondent à des stations situées aux moyennes et hautes latitudes. Nous avons donc considéré deux méthodes permettant l'estimation de la colonne troposphérique TOMS sur une échelle quasiment globale : la méthode du résidu de Chandra *et al.* [2003], utilisant TOMS et MLS, et la méthode CCD de Ziemke *et al.* [2003]. Les comparaisons entre l'O₃ estimé et la quantité mesurée à différentes stations du WOUDC sont indiquées. Il faut cependant garder à l'esprit que, outre les différences de techniques de mesure et d'algorithmes d'inversion, différentes périodes de mesure sont considérées. Ainsi, les validations de Chandra *et al.* [2003] et Ziemke *et al.* [2003] reposent sur de longues séries de mesures, alors que la validation pour IMG repose sur moins de 4 mesures par station en moyenne et est donc statistiquement moins fiable. D'autre part, la différence quadratique n'est pas spécifiée pour la méthode CCD, alors que les autres validations montrent bien que le biais n'est pas forcément représentatif (biais nul pour la méthode TOMS/MLS à Churchill mais associé à une différence quadratique de 9.5 DU).

Des valeurs de biais très différentes peuvent être obtenues pour les différentes méthodes mais les écarts observés sont globalement du même ordre de grandeur. Nous pouvons notamment remarquer que la difficulté à mesurer l'ozone troposphérique aux hautes et moyennes latitudes de l'hémisphère nord est commune à toutes ces méthodes, et s'explique à la fois par le manque de sensibilité aux premières couches de l'atmosphère et par la forte

TAB. 6.5 – *Biais entre les colonnes troposphériques d'ozone calculées à partir des mesures sondes et les colonnes inversées à partir des mesures satellitaires (biais=sonde-sat) IMG (NNIASI-Tropo) et TOMS en utilisant la méthode résiduelle TOMS-MLS et la méthode différentielle des nuages convectifs CCD. L'erreur RMS est indiquée entre parenthèses lorsqu'elle est spécifiée.*

Station		IMG NNIASI-Tropo ^a (DU)	TOMS-MLS ^b (DU) [Chandra et al., 2003]	TOMS CCD ^c (DU) [Ziemke et al., 2003]
012	Sapporo	-1 (14)		-22
014	Tateno	0.2 (4.2)	5.9 (9.3)	1
076	Goose Bay	1.9 (9.6)		0.12
077	Churchill	8.5 (16.9)	0 (9.5)	
099	Hohenpeissenberg	9.6 (12.3)	2.4 (10.8)	-5
107	Wallops Island	8.7 (10.3)	3 (7.4)	12
156	Payerne	12 (18.2)		9
174	Lindenberg	15.7 (19.7)		10
221	Legionowo	13.8 (19.8)	6.2 (11.1)	2
242	Prague	11.8 (15.2)		12
254	Laverton	1.1 (5.5)	0.5 (13.2)	-6

^a Validation sur les périodes de mesures IMG/ADEOS 26-28/12/1996, 25-28/01/1997, 1-10/04/1997 et 16-19/06/1997 ;

^b Validation pour TOMS/EP, TOMS/Nimbus-7 et MLS/UARS sur 1991-1992 et 1996-1997 ;

^c Validation pour TOMS/Nimbus-7 sur 1979-1984. Les colonnes estimées par Ziemke et al. [2003], correspondent à la haute troposphère. Les résultats indiqués sont comparés sans contrainte sur l'altitude de la tropopause.

variabilité de l'ozone dans la région de la tropopause à ces latitudes [Chandra et al., 2003; Ziemke et al., 2003].

6.3 Application aux mesures ballon LPMA/IASI

Dans le cadre des travaux de l'ISSWG pour la préparation de la mission IASI, le Laboratoire de Physique Moléculaire et Applications (LPMA) a développé un spectromètre à transformée de Fourier embarqué sous ballon utilisant le même principe d'observation que IASI, l'instrument LPMA/IASI.

Une description détaillée est fournie par Té et al. [2002]. LPMA/IASI mesure le rayonnement dans l'infrarouge thermique entre 600 et 3000 cm^{-1} avec une résolution spectrale égale à 0.1 cm^{-1} après apodisation. Différents modes de fonctionnement permettent une visée au nadir ou au limbe.

Les spectres mesurés au nadir étant des spectres de type IASI, l'algorithme développé pour IASI peut être appliqué à leur inversion afin de tester la méthode sur des spectres réels. Ils doivent cependant être adaptés aux caractéristiques IASI, dont la résolution spectrale est égale à 0.5 cm^{-1} .

Le premier vol de l'instrument a eu lieu le 13 mars 2001 [Té et al., 2002], et le second vol a eu lieu le 5 août 2002, tous deux à partir de la base de lancement d'Esrange (68°N, 21°E), près de Kiruna en Suède. Nous nous sommes ici intéressés aux spectres du second vol uniquement, dont le profil est représenté sur la figure 6.32. Les spectres ont été enregistrés pendant environ 3h48mn, avec une phase ascendante d'environ 1h35mn et une période de plafond autour de 30 km d'altitude pendant environ 2h12mn. C'est cette dernière période

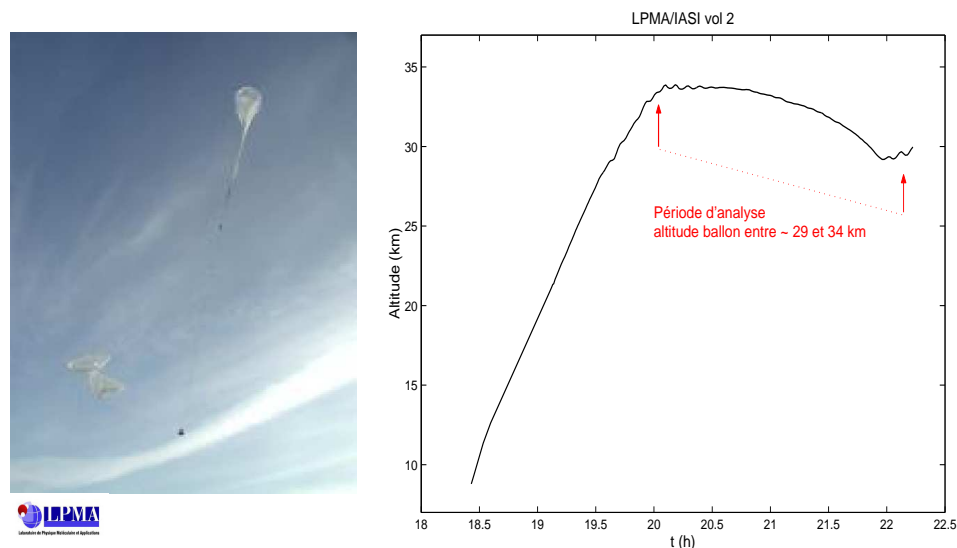
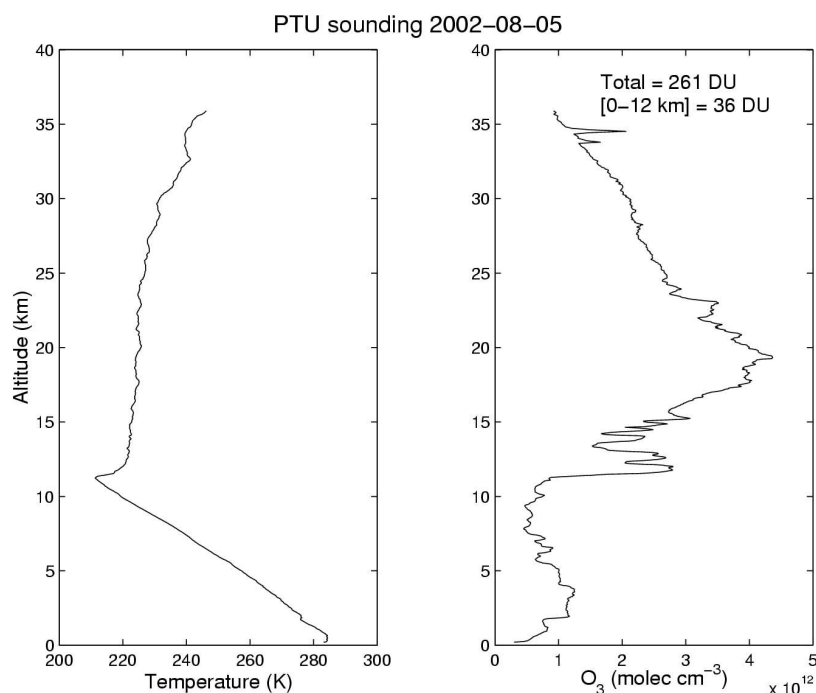


FIG. 6.32 – Profil du second vol du ballon LPMA/IASI.

FIG. 6.33 – Sondage PTU/O₃ effectué le jour du second vol LPMA/IASI.

que nous allons étudier. Elle comprend 105 spectres mesurés au nadir dans les conditions IASI.

En complément du spectromètre LPMA/IASI, plusieurs instruments destinés à l'observation des conditions atmosphériques générales ont été embarqués à bord de la nacelle. En particulier, un système d'imagerie permet de déduire la couverture nuageuse au cours du vol. En parallèle, une sonde PTU, lâchée en début de vol, a mesuré les profils de pression, de température et d'ozone. Les profils de température et d'ozone mesurés sont

représentés sur la figure 6.33.

Avec les spectres mesurés et le sondage PTU/O₃, le LPMA nous a fourni, pour chaque mesure, les profils de température et de pression associés, déduits des données existantes sur les conditions atmosphériques au cours du vol (sondage, analyses ECMWF, *etc.*), ainsi que les températures de surfaces calculées à partir des spectres. Ce sont ces données qui sont utilisés au LPMA pour l'inversion des mesures (méthode d'ajustement global à partir du transfert radiatif) et que nous avons utilisés pour l'inversion par RN. Nous avons également utilisé ces profils pour calculer le profil de concentration d'ozone à partir du profil de pression partielle d'ozone mesuré par la sonde. Les colonnes partielles d'ozone estimées varient donc légèrement en fonction de la mesure considérée, mais cette variation n'est pas une variation de la quantité absolue d'ozone. La colonne totale calculée pour les mesures ballon correspond en réalité à la colonne entre la surface et le ballon. Elle varie donc fortement en fonction de l'altitude de ce dernier.

Avant de présenter les résultats de l'inversion des spectres, la capacité de l'algorithme IASI à traiter des mesures ballons est discutée à partir de simulations.

6.3.1 Étude d'une mesure LPMA/IASI simulée

Afin de mieux comprendre le comportement de l'algorithme dans le cas d'une mesure ballon, nous avons comparé les résultats de l'inversion sur des simulations à 800 km (simulations d'observations satellitaires) et à 30 km (ballon stratosphérique).

La différence entre les deux types d'observation est représentée sur la figure 6.34 pour l'atmosphère standard US 1976. D'après les simulations, le rayonnement mesuré à bord du satellite à 800 km d'altitude est plus important que celui mesuré à bord du ballon à 30 km. Le calcul des Jacobiens pour les deux types de mesure a montré que les sensibilités en-dessous de 30 km d'altitude sont similaires. L'écart observé provient donc de la contribution des couches atmosphériques situées au-dessus de 30 km, principalement de la contribution de la haute stratosphère pour l'ozone. La signature spectrale résultante est caractérisée par une émission prédominante, due au rapport de mélange d'ozone considérable associé à la diminution de la pression atmosphérique : le rayonnement émis par les fortes quantités d'ozone ne sera pas entièrement réabsorbé avant d'atteindre l'espace. La différence absolue entre le spectre spatial et le spectre ballon correspond bien à une signature d'émission de l'ozone dont l'amplitude est supérieure au niveau de bruit estimé pour les mesures. L'altitude de la mesure considérée aura donc certainement un impact sur les spectres entrés à l'algorithme, et ainsi sur les colonnes d'ozone inversées.

Les résultats de l'inversion pour les deux spectres simulés ainsi que l'influence d'un bruit aléatoire caractéristique des deux types de mesure (IASI et IASI ballon) sont présentés dans le tableau 6.6.

Bien que la colonne C_{tropo} soit fortement sous-estimée, les colonnes partielles troposphériques C_6 et C_{12} sont bien restituées pour les deux spectres. La colonne C_{16} et la colonne CT sont nettement plus faibles pour l'inversion du spectre à 30 km. Il est cependant intéressant de remarquer que la colonne à 30 km US 1976 est de 281 DU et est donc très proche de la colonne CT restituée pour le spectre ballon. La colonne totale restituée est donc bien le contenu total d'ozone en-dessous de l'instrument. La sous-estimation des colonnes C_{tropo} et C_{16} suggère une influence de la haute stratosphère sur leur inversion. L'amplitude du bruit sur les mesures ballon est beaucoup plus petite que celle prévue pour IASI (plus de 10 fois plus faible) et l'impact du bruit est donc très faible.

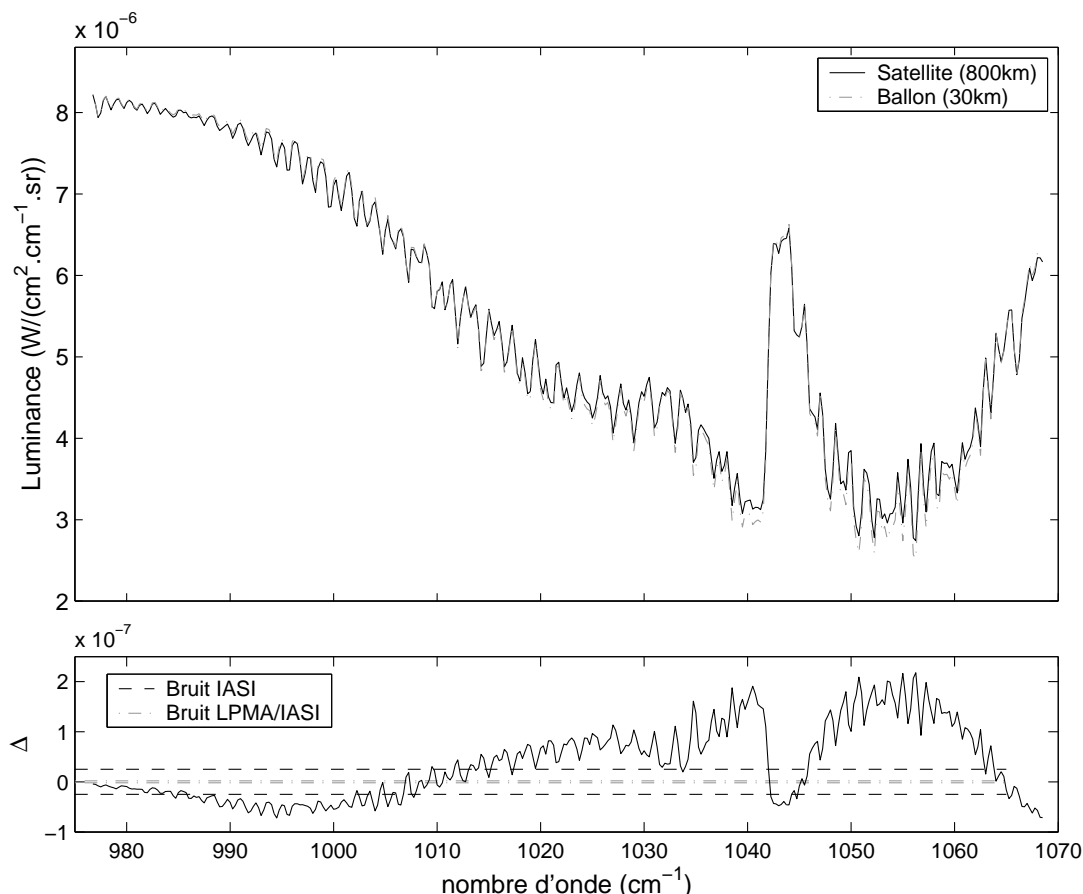


FIG. 6.34 – Comparaison de spectres simulés par le code de transfert radiatif LBLRTM avec l’atmosphère standard US 1976 pour une observation à 800 km d’altitude, caractéristique d’un satellite en orbite polaire, et à 30 km d’altitude, caractéristique d’un ballon stratosphérique. Δ correspond à la différence entre la simulation satellitaire et la simulation ballon ($r_{\text{sat}} - r_{\text{ballon}}$).

6.3.2 Inversion de l’ozone LPMA/IASI

Les résultats de l’inversion sont représentés sur les figures 6.35 et 6.36 pour les algorithmes opérationnel et troposphérique respectivement. Ils sont comparés aux colonnes intégrées à partir du sondage (profil de concentration d’ O_3 dans les conditions de pression et de température déduites par le LPMA), prises comme valeurs de référence (la colonne totale de référence est intégrée entre la surface et l’altitude du ballon).

L’erreur plus importante sur l’inversion des premiers spectres est due à la présence de nuages, visible sur les images associées aux mesures. Malgré de fortes oscillations des valeurs inversées, les colonnes sont globalement en bon accord, hormis les colonnes [0-6 km] et les colonnes troposphériques qui sont sous-estimées pour les inversions IMG d’environ 5 DU pour C_6 et jusqu’à plus de 20 DU pour C_{tropo} .

Cette sous-estimation a déjà été observée pour des situations similaires lors de la comparaison plus globale des inversions IMG avec les mesures de sondes d’ozone (partie 6.2.2). Le profil d’ozone mesuré ici par la sonde se rapproche en effet des profils mesurés aux moyennes latitudes de l’hémisphère nord en 1997, avec la signature de masses d’air pauvres en O_3 dans la stratosphère (vraisemblablement d’origine troposphérique).

TAB. 6.6 – Comparaison des inversions de l'O₃ à partir de spectres simulés pour une observation satellitaire (à 800 km d'altitude) et pour une observation ballon (à 30 km d'altitude) avec l'atmosphère standard US 1976, et évaluation de l'influence d'un bruit IASI ($\sim 2.5 \cdot 10^{-8} \text{ W}/(\text{cm}^2 \text{cm}^{-1} \text{sr})$) sur les spectres satellitaires et d'un bruit LPMA/IASI ($\sim 2 \cdot 10^{-9} \text{ W}/(\text{cm}^2 \text{cm}^{-1} \text{sr})$) sur les spectres ballon (calcul de $\Delta = \text{inversion de référence} - \text{inversion bruitée}$).

	C_{tropo} (DU)	C_6 (DU)	C_{12} (DU)	C_{16} (DU)	CT (DU)
US 1976 ($C_{30} \sim 281$ DU)	30.1	13.9	36.9	72.8	345.3
RN spectre satellitaire	23.3	14.5	36.1	73.9	327.1
RN spectre ballon	16.8	13.3	33.4	65.8	285.2
Bruit IASI Δ moyen	-0.15	-0.14	-0.48	-0.86	-0.5
déviatiion standard	2.01	0.75	1.83	3.23	10.1
Bruit LPMA/IASI Δ moyen	0.01	-0.01	-0.02	-0.01	0.07
déviatiion standard	0.1	0.06	0.1	0.2	0.5

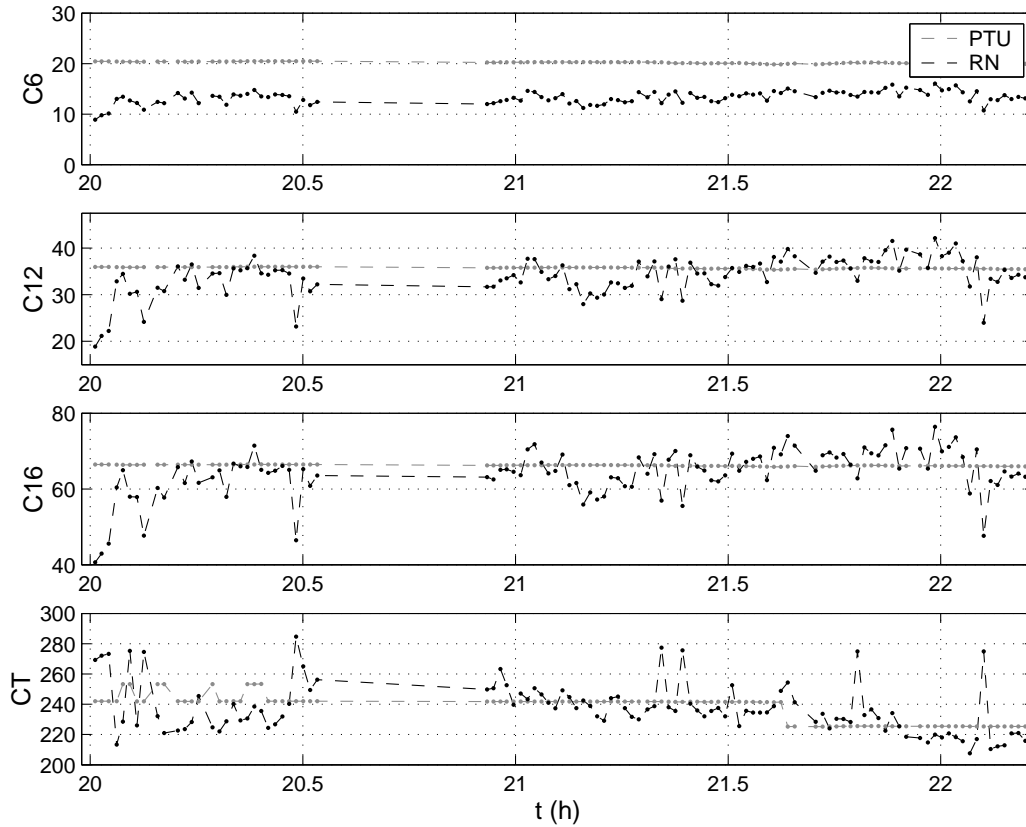


FIG. 6.35 – Comparaison des inversions d'O₃ réalisées par l'algorithme RN IASI aux colonnes déduites des profils déduits du sondage PTU/O₃ effectué le jour du vol LPMA/IASI en utilisant l'ensemble des mesures disponibles (fournis par le LPMA).

L'inversion de la colonne troposphérique est moins précise pour ce type de profils et est généralement caractérisée par une forte sous-estimation. Les concentrations d'O₃ dans la

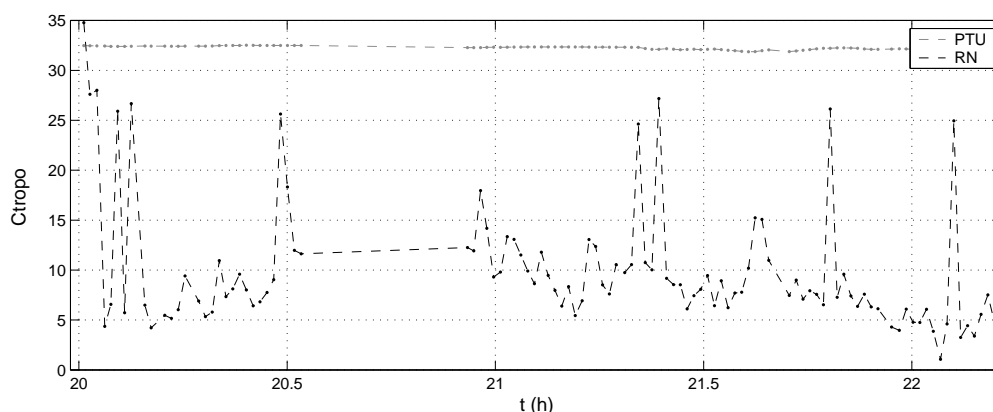


FIG. 6.36 – Même chose que la figure 6.35 pour la colonne troposphérique d' O_3 .

basse troposphère sont d'autre part élevées, d'où la tendance à sous-estimer C_6 .

Les oscillations peuvent s'expliquer par la variation des températures spécifiées pour les inversions, notamment des températures de surface. En particulier, les pics observés correspondent à des pics de température de surface, très probablement liés à des discontinuités de la surface.

L'algorithme développé pour l'inversion de l' O_3 à partir des mesures IASI semble donc pouvoir être utilisé pour le traitement des mesures ballon LPMA/IASI.

6.4 Conclusions

L'application de l'algorithme d'inversion aux mesures atmosphériques réelles permet donc de mettre en évidence un certain nombre de problèmes qui ne sont pas rencontrés lors du traitement de simulations.

Les mesures de l'instrument satellitaire IMG/ADEOS constituent un outil de validation très important pour l'évaluation des capacités de IASI puisque les spectres IMG peuvent aisément être adaptés aux caractéristiques de IASI. Cependant, les paramètres additionnels nécessaires à l'inversion ne sont pas connus pour IMG. Les profils de température ECMWF ont dû être utilisés, ce qui peut engendrer un certain nombre d'incohérences, et les températures de surface ont été estimées à partir des spectres, par une méthode extrêmement simplifiée n'utilisant qu'une seule luminance. Enfin, l'information sur la couverture nuageuse n'était pas disponible. L'impact des nuages a été pris en compte en utilisant le filtre nuages développé pour IMG par *Hadji-Lazaro et al.* [2001], qui permet en outre de filtrer certains dysfonctionnements instrumentaux. Tous ces paramètres seront connus pour IASI.

Un filtre de qualité additionnel basé sur les luminances inversées a permis de vérifier la cohérence des inversions, en particulier par rapport aux simulations utilisées lors de la calibration du réseau de neurones. Les deux filtres utilisés sont complémentaires : le filtre radiance "oublie" un certain nombre de cas nuageux pour lesquels l'inversion n'est cependant pas fiable.

Les distributions d'ozone inversées pour les mesures IMG de 4 périodes de bonne qualité (26-28/12/1996, 25-28/01/1997, 1-10/04/1997 et 16-19/06/1997) ont été présentées. Elles ont permis de réaliser une première validation de la méthode. Les colonnes totales

mesurées par l'instrument TOMS, également présent sur ADEOS, ont permis de vérifier la capacité de IASI à mesurer une colonne totale de bonne qualité (en présentant l'avantage de fournir des mesures de jour comme de nuit).

La comparaison des inversions de colonnes troposphériques et partielles avec des mesures réalisées par des sondes d'ozone, bien que statistiquement peu représentative, a montré un bon accord dans les régions peu polluées. IMG semble cependant avoir tendance à sous-estimer les colonnes lorsque la concentration d'ozone dans les premières couches de l'atmosphère est élevée.

Les profils d'ozone mesurés par les sondes ont également permis de réaliser une première validation de la méthode de caractérisation des inversions, c'est-à-dire ici de la possibilité d'utiliser une information *a priori* explicite issue d'une classification et le noyau caractérisant la sensibilité des inversions correspondant pour simuler le comportement du RN. D'après cette étude, le comportement du RN est difficile à simuler à partir d'une simple classification. Une méthode plus adaptée au RN devra être développée. La classification permet cependant souvent d'estimer un profil d'ozone proche de la réalité, bien qu'elle devra être améliorée (en particulier aux hautes latitudes) et élargie afin de mieux représenter les situations polluées.

Les distributions de colonnes troposphériques ont d'autre part été comparées aux colonnes estimées à partir des observations TOMS, largement utilisées actuellement. Cette comparaison a permis de vérifier que notre méthode d'observation et d'analyse permet d'atteindre une information dans la basse troposphère, et ainsi d'obtenir des colonnes troposphériques plus proches de la réalité. Elle présente d'autre part l'avantage d'être une méthode directe, simple à mettre en œuvre et à utiliser.

Une forte limitation à cette application aux spectres IMG provient de la faible couverture spatio-temporelle des mesures due à la courte durée des périodes étudiées et à la couverture relativement faible de l'instrument, encore dégradée par l'application des filtres de qualité. Une validation statistiquement représentative n'a donc pas pu être réalisée.

L'algorithme d'inversion a également été appliqué à l'inversion de spectres mesurés par l'instrument LPMA/IASI au cours de son second vol à bord d'un ballon stratosphérique (5 août 2003). La comparaison des inversions avec les colonnes calculées à partir du sondage a permis de montrer la capacité d'adaptation des algorithmes. Les points faibles de l'algorithme, liés à la sensibilité des spectres et à l'ensemble d'apprentissage, se retrouvent cependant sur l'étude de ce cas.

Une validation plus définitive devra être réalisée après le lancement de l'instrument IASI en utilisant les températures et les informations sur la couverture nuageuse associées, en gardant à l'esprit que l'algorithme peut facilement être modifié dans le cas d'un biais trop important en réalisant un nouvel apprentissage du réseau de neurones.

Une méthode d'évaluation de l'erreur d'inversion plus systématique devra être développée afin de renseigner les utilisateurs des données sur la précision des mesures et la sensibilité de l'instrument. Cette information est en effet indispensable afin de tenir compte des biais de l'inversion pour valider ou forcer les modèles atmosphériques, ou comparer les inversions à d'autres types de mesures. Elle permet d'autre part de coupler, grâce aux techniques d'assimilation de données, les informations fournies par différents instruments (en utilisant un modèle comme intermédiaire).

Un ensemble d'apprentissage plus représentatif et plus réaliste devra être construit, en utilisant par exemple des mesures réelles et des cas extrêmes artificiels afin d'éviter d'éventuels biais pour les situations situées aux bords du domaine d'apprentissage du RN.

Un meilleur apprentissage permettrait d'éviter le problème de la prise en compte de la sensibilité dans les comparaisons : le RN pourrait être considéré comme représentatif de la réalité.

Chapitre 7

Analyse de l'ozone troposphérique IMG/ADEOS

Dans le chapitre précédent, nous avons utilisé les mesures effectuées par l'instrument IMG/ADEOS en 1996-1997 afin de valider l'algorithme d'inversion. Les distributions d'O₃ inversées ont été comparées aux observations indépendantes disponibles pour les mêmes périodes. Nous avons montré que la colonne totale restituée est globalement en bon accord avec les mesures de l'instrument TOMS/ADEOS et que l'O₃ troposphérique est cohérent avec les mesures sondes, malgré une tendance des colonnes inversées à sous-estimer cette quantité aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord.

Les distributions d'O₃ troposphérique IMG/ADEOS ont permis de mettre en évidence les différentes régions polluées, où de grandes quantités de précurseurs de l'O₃ sont émises par les activités humaines : les régions industrialisées de l'hémisphère nord mais également les zones de brûlage intense de la végétation dans les tropiques et l'hémisphère sud. Elles suggèrent également l'importance du transport par la présence de panaches de pollution, bien visibles au-dessus des océans Atlantique et Pacifique.

Ce chapitre a pour but de vérifier la cohérence des distributions troposphériques IMG et d'étudier l'apport potentiel de ce type d'observations pour la compréhension des processus régissant l'équilibre de l'O₃ dans la troposphère à l'échelle globale. Nous allons dans une première partie nous intéresser aux précurseurs de l'O₃, à leur distribution et à leurs sources, en nous appuyant sur les différentes données globales disponibles. Les principaux processus dynamiques de transport de l'O₃ et de ses précurseurs seront décrits dans la partie 7.2. Enfin, dans la partie 7.3, un premier bilan descriptif de l'O₃ sera réalisé.

L'étude est ici limitée à l'exploitation des données IMG mesurées entre le 1^{er} et le 10 avril 1997, période IMG considérée ayant la meilleure couverture spatiale. Nous utiliserons en priorité les données globales pour la même période. Lorsqu'elles ne sont pas disponibles des données les plus représentatives possible (moyennées ou estimées pour avril 1997 ou une période proche) seront utilisées.

7.1 Origine de l'ozone troposphérique

Comme nous l'avons vu dans le premier chapitre de ce document, l'O₃ est un constituant secondaire résultant de réactions photochimiques complexes. Sa présence dans la troposphère s'explique à la fois par les échanges de masses d'air entre la stratosphère

et la troposphère et par les processus de production photochimique *in situ*. D'après *Lelieveld et Dentener* [2000], la production photochimique représente 75 % de l'origine de l'O₃ troposphérique et 90 % de cet O₃ produit dans la troposphère peut être expliqué par la photo-oxydation du CO, du CH₄ et des HCNM contrôlée par les NO_x=NO+NO₂. Selon les quantités de NO_x présentes, il y aura production ou destruction nette d'O₃. Si l'on considère un ensoleillement (*i.e.* flux UV) suffisant et des concentrations d'OH, de CO et/ou d'hydrocarbures (CH₄ et HCNM) suffisantes, les NO_x peuvent être considérés comme un facteur limitant la production d'O₃, sauf lorsque leur concentration devient trop importante.

La durée de vie du CH₄ est extrêmement longue, supérieure à environ 8 ans [*IPCC*, 2001]. Les constantes de temps des échanges intra-hémisphériques étant de quelques mois et celles des échanges inter-hémisphériques de 1 an environ, cette durée de vie permet un transport et un mélange sur une échelle hémisphérique à globale. Il est donc relativement difficile d'identifier clairement les régions sources et les processus de transport à partir de sa distribution. En revanche, la durée de vie plus courte du CO, globalement comprise entre quelques semaines et quelques mois (0.08-0.25 ans [*IPCC*, 2001]), permet son transport dans le vent des zones d'émission conduisant à la formation de panaches de pollution. Le NO_x a une durée de vie très courte, de moins d'un jour [*IPCC*, 2001], et sera faiblement transporté. Sa distribution indique donc plutôt les régions sources de pollution.

Les distributions observées pour la période étudiée (1-10 avril 1997) sont dans cette partie présentées pour ces trois précurseurs de l'O₃, mais nous nous intéresserons plus précisément aux distributions de CO et de NO₂ qui sont plus marquées par les régions sources.

7.1.1 Les précurseurs et leur détection

Tout comme l'O₃, le CO et le CH₄ ont des signatures spectrales intenses dans l'infrarouge thermique et peuvent être observés par des instruments tels que IASI et IMG. Un travail important sur l'inversion du CO et du CH₄ à partir des spectres IR est mené au Service d'Aéronomie, dans le cadre de la mission IASI, afin de permettre l'observation de l'O₃ et de ses principaux précurseurs par le même instrument [*Hadji-Lazaro et al.*, 1999; *Clerboux et al.*, 2003a]. Une précision d'environ 10 % est atteinte pour la colonne totale de CO et d'environ 3 % pour la colonne totale de CH₄, ce qui est suffisant pour observer leurs variations spatiales et temporelles [*Turquety et al.*, 2003]. Les inversions IMG de CO et de CH₄ ont été validées en utilisant les réseaux de mesures sol CMDL (Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory¹, rapport de mélange à la surface) et NDSC (Network for Detection of Stratospheric Change², colonnes totales) [*Clerboux et al.*, 2001; *Clerboux et al.*, 2003a], seules mesures indépendantes disponibles pour la période considérée.

Un bon indicateur des quantités de NO_x est la concentration de NO₂. En effet, même si la plupart des NO_x sont émis sous forme de NO, celui-ci s'équilibre rapidement (en quelques minutes) avec le NO₂. Les quantités de NO₂ présentes dans la troposphère sont observées par l'instrument GOME (Global Ozone Monitoring Experiment) [*Burrows et al.*, 1999], lancé en avril 1995 à bord du satellite ERS-2 de l'Agence Spatiale Européenne (ASE). GOME mesure le rayonnement solaire (ultraviolet et visible) rétro-diffusé par

¹<http://www.cmdl.noaa/index.html>

²<http://www.ndsc.ncep.noaa.gov>

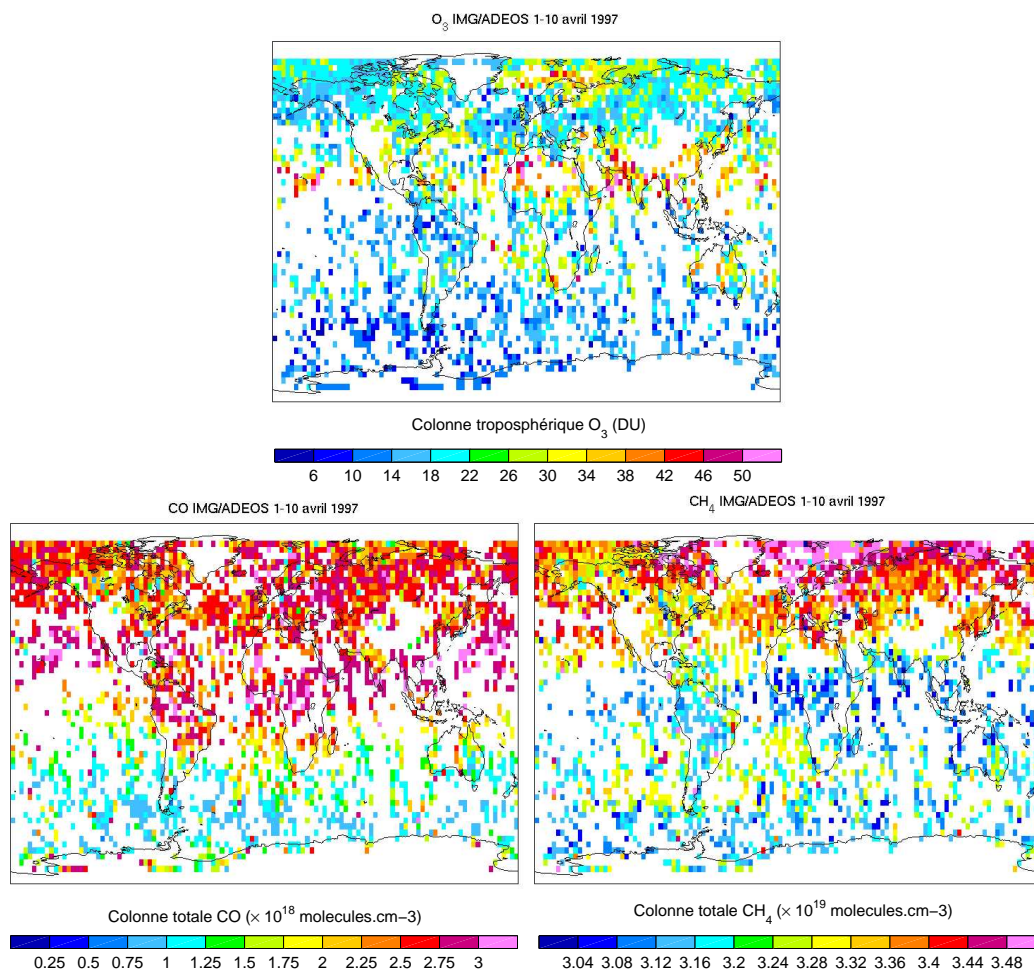


FIG. 7.1 – Distributions d'O₃ troposphérique ($C_{\text{tropo}} \text{O}_3$), de CO et de CH₄ IMG observées pour la période du 1-10 avril 1997, filtrées et moyennées sur une grille 3° × 3°.

l'atmosphère et la surface de la Terre. Nous allons ici utiliser les colonnes troposphériques NO₂ déduites des mesures GOME par la méthode de l'excès troposphérique (Tropospheric Excess Method, TEM) développée par *Richter et Burrows* [2002] et améliorée par *Martin et al.* [2002b]. Le NO₂ troposphérique est calculé en trois étapes :

1. La colonne totale de NO₂ est déterminée par ajustement des spectres mesurés par GOME. La méthode de *Martin et al.* [2002b] corrige les biais artificiels induits par l'instrument lui-même (par la diffusion parasite en particulier).
2. La contribution stratosphérique est soustraite. *Richter et Burrows* [2002] estiment cette contribution au-dessus des régions très propres (Pacifique) et la supposent invariante avec la longitude. *Martin et al.* [2002b] utilisent un modèle atmosphérique en complément afin de tenir compte des colonnes troposphériques non nulles au-dessus de cette région.
3. L'erreur due à la trajectoire du rayonnement rétro-diffusé est corrigée en utilisant un facteur de masse d'air (calculé en utilisant un code de transfert radiatif). L'amélioration principale de la méthode de *Martin et al.* [2002b] réside dans le calcul de ce facteur.

L'erreur globale est estimée à environ $1.5 \cdot 10^{15}$ molécules/cm² pour les inversions de *Richter et Burrows* [2002] et va de $0.7 \cdot 10^{15}$ molécules/cm² au-dessus des océans à $1.0\text{-}3.3 \cdot 10^{15}$ au-dessus des continents pour les inversions de *Martin et al.* [2002b]. La précision des colonnes inversées est donc limitée. Les distributions obtenues permettent cependant d'identifier les régions de fortes concentrations de NO₂.

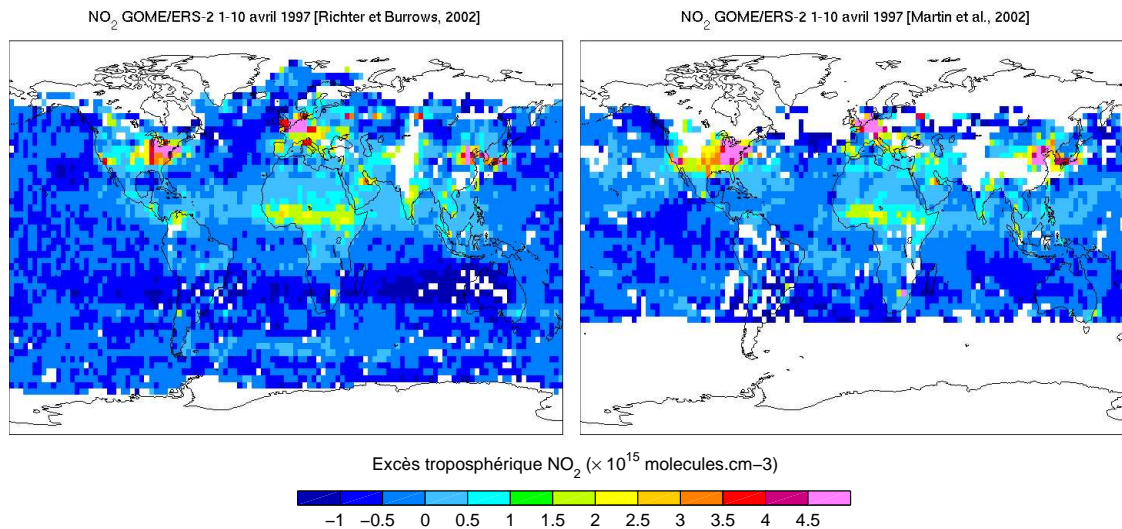


FIG. 7.2 – Distributions de NO₂ GOME, observées pour la période 1-10 avril 1997, moyennées sur une grille $3^\circ \times 3^\circ$. Les inversions réalisées par Richter et Burrows [2002] et Martin et al. [2002b] sont représentées (voir texte pour plus de précisions).

La distribution d'O₃ troposphérique IMG obtenue pour la période considérée (1-10 avril 1997), décrite dans la partie 6.1, est rappelée sur la figure 7.1, avec les distributions de CO et de CH₄ correspondantes. Les distributions de NO₂ obtenues pour la même période en utilisant les deux méthodes d'inversion des mesures GOME, sont représentées sur la figure 7.2.

Les concentrations de CH₄ les plus importantes sont observées dans l'hémisphère nord ainsi qu'aux moyennes latitudes de l'hémisphère sud. Sa distribution est globalement latitudinale et représentative de la distribution générale des sources.

Les maxima de CO observés par IMG sont localisés dans les mêmes régions que les maxima de NO₂ GOME (quelle que soit la méthode utilisée pour l'inversion) : est et ouest de l'Amérique du Nord, est de l'Asie et Europe du Nord. De très fortes concentrations de CO sont d'autre part observées sur l'Amérique centrale et le nord de l'Amérique du Sud, le centre de l'Afrique, le Moyen-Orient, l'Inde et l'Asie du Sud-Est. Le NO₂ mesuré est également fort dans ces régions, bien que beaucoup moins important que dans les régions polluées de l'hémisphère nord.

De grands panaches de CO sont observés au-dessus de l'Atlantique et du Pacifique Nord. La durée de vie du NO₂ étant très courte, le transport est moins important. Des panaches sont cependant visibles, bien que leur localisation dépende de la méthode d'inversion utilisée. En effet, le panache observé au-dessus de l'Atlantique tropicale par *Richter et Burrows* [2002] est localisé plus au sud dans le cas de *Martin et al.* [2002b]. Au-dessus de l'Océan Indien, il semble moins étendu pour *Martin et al.* [2002b], alors que le panache au-dessus de l'Atlantique Nord est plus étendu pour les inversions de *Martin et al.*

[2002b]). Celles-ci présentent également des concentrations relativement fortes au-dessus du Pacifique Nord qui ne sont pas détectées par *Richter et Burrows* [2002].

L'étude des cartes met en évidence plusieurs grandes zones d'émission de précurseurs, cohérentes avec les fortes quantités d'O₃, représentées sur la figure 7.3 : 1) Afrique ; 2) Amérique du Nord ; 3) Amérique Centrale et Amérique du Sud ; 4) Asie ; 5) Europe.

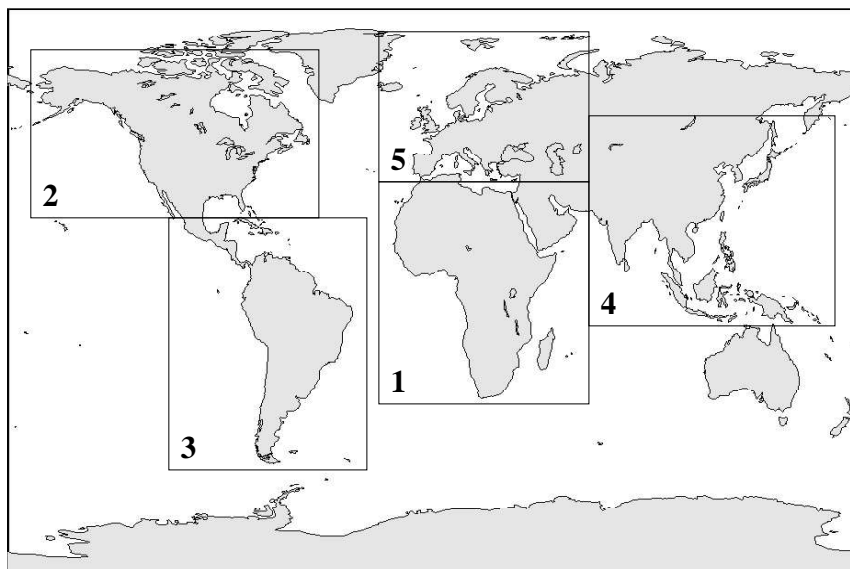


FIG. 7.3 – Régions importantes pour l'étude de l'ozone et de ses précurseurs dans la troposphère.

Une étude de corrélations ne montre pas de corrélation globale significative entre l'O₃ troposphérique et le CO ou le NO₂. Ceci est probablement dû aux différentes durées de vie, et donc variabilités, de ces constituants et à la complexité de leur équilibre. Cependant, la courte période étudiée (10 jours seulement) ne permet pas de réaliser une étude statistique fiable.

7.1.2 Les principales sources de précurseurs et leur détection

Les sources de précurseurs de l'O₃ troposphérique, résumées dans le tableau 1.1 [WMO, 1999], sont très diverses. Elles peuvent être d'origine naturelle (océans, végétation, feux naturels de forêts ou de brousse, éclairs) ou résulter des activités humaines (combustibles fossiles, biocarburants, agriculture, brûlage de la biomasse).

60 % des émissions de CH₄ sont liées aux activités humaines telles que l'agriculture, l'utilisation de combustibles fossiles et les déchets [IPCC, 2001]. Les terres inondées et les océans constituent les principales sources naturelles de CH₄ (respectivement 25 et 2 % des sources totales) [WMO, 1999]. Comme nous l'avons déjà précisé, le CH₄ a une durée de vie suffisamment longue pour permettre un mélange intra et inter-hémisphérique. L'étude de cette molécule est donc plus difficile pour regarder la cohérence des distributions. Nous nous intéresserons en priorité aux émissions de CO et de NO_x.

Plus de 85 % des sources de CO sont d'origine anthropique, et émises dans la troposphère par les feux de biomasse, l'utilisation de combustibles fossiles ou de biocar-

burants (principale source d'énergie dans les pays en voie de développement [Yevish et Logan, 2003]). L'oxydation *in situ* d'hydrocarbures constitue également une source importante de CO, dont la moitié environ peut être considérée comme d'origine anthropique [IPCC, 2001]. La végétation représente une source naturelle importante pour cette molécule. Même si elle ne représente qu'environ 8 % des émissions directes, elle est estimée à environ 70 % des émissions de HCNM [WMO, 1999].

La source de NO_x la plus importante provient de l'utilisation de combustibles fossiles, dont 40 % proviennent des transports [IPCC, 2001]. Les émissions liées au brûlage de la biomasse et aux sols sont très importantes mais moins bien quantifiées. Les NO_x sont également émis dans la troposphère libre par les avions (entre 8 et 12 km d'altitude), l'ammoniac et les éclairs [Lee et al., 1997].

Des inventaires d'émissions, réalisés à partir de données sur la localisation des sources, leurs facteurs d'activité et leurs facteurs d'émission, permettent de fournir une estimation de l'importance relative des différentes sources de pollution dans une région donnée, par exemple l'inventaire EDGAR (Emission Database for Global Atmospheric Research) pour 1980 [Logan et al., 1981], 1990 [Olivier et al., 1996] et 1995, [Olivier and Berdowski, 2001]. Les émissions anthropiques issues de l'inventaire EDGAR-3.2³, sont représentées sur la figure 7.4. Elles tiennent compte des émissions associées aux carburants fossiles, aux biocarburants, aux procédés industriels, à l'agriculture, aux feux de biomasse et à la gestion de déchets.

Il existe cependant de fortes incertitudes associées principalement aux facteurs d'activité et aux facteurs d'émissions. De récentes études ont montré que ces incertitudes peuvent être diminuées par l'utilisation couplée de mesures de gaz traces atmosphériques et d'un modèle atmosphérique grâce aux techniques de modélisation inverse. Par exemple, Martin et al. [2003] ont estimé les émissions de NO_x à partir des mesures de NO_2 troposphérique de l'instrument GOME [Burrows et al., 1999; Martin et al., 2002b], Pétron [2003] a réalisé une inversion des principales sources de CO à partir des mesures du CO atmosphérique de l'instrument MOPITT [Drummond and Mand, 1996; Deeter et al., 2003] et Palmer et al. [2003] ont estimé les émissions d'isoprène à partir des mesures de formaldéhyde GOME [Palmer et al., 2001].

L'objectif de notre étude n'est évidemment pas de réaliser un inventaire précis des émissions, mais de localiser les principales sources de précurseurs afin de vérifier la cohérence des différentes mesures dont nous disposons. Nous nous baserons pour cela sur différentes données disponibles (à l'échelle globale) pour la période IMG considérée.

Sources technologiques et agricoles

Les émissions anthropiques sont associées aux moyens de transport (terrestre, ferroviaire, maritime ou aérien), à l'industrie, à la production d'énergie et aux activités domestiques (chauffage, cuisine, etc). Ces sources sont importantes pour les précurseurs étudiés ici. Les émissions agricoles sont principalement des émissions de CH_4 dues à l'élevage (fermentations entériques et déchets des animaux) et aux rizières (nous omettons ici les émissions liées au brûlage des déchets agricoles, qui seront traitées avec les feux de biomasse). Les pratiques agricoles de fertilisation des sols accentuent aussi fortement les émissions de NO_x par les sols [Yienger and Levy, 1995]. Nous considérerons tout de même cette source comme une source biogénique naturelle.

³<http://arch.rivm.nl/env/int/coredata/edgar/index.html>

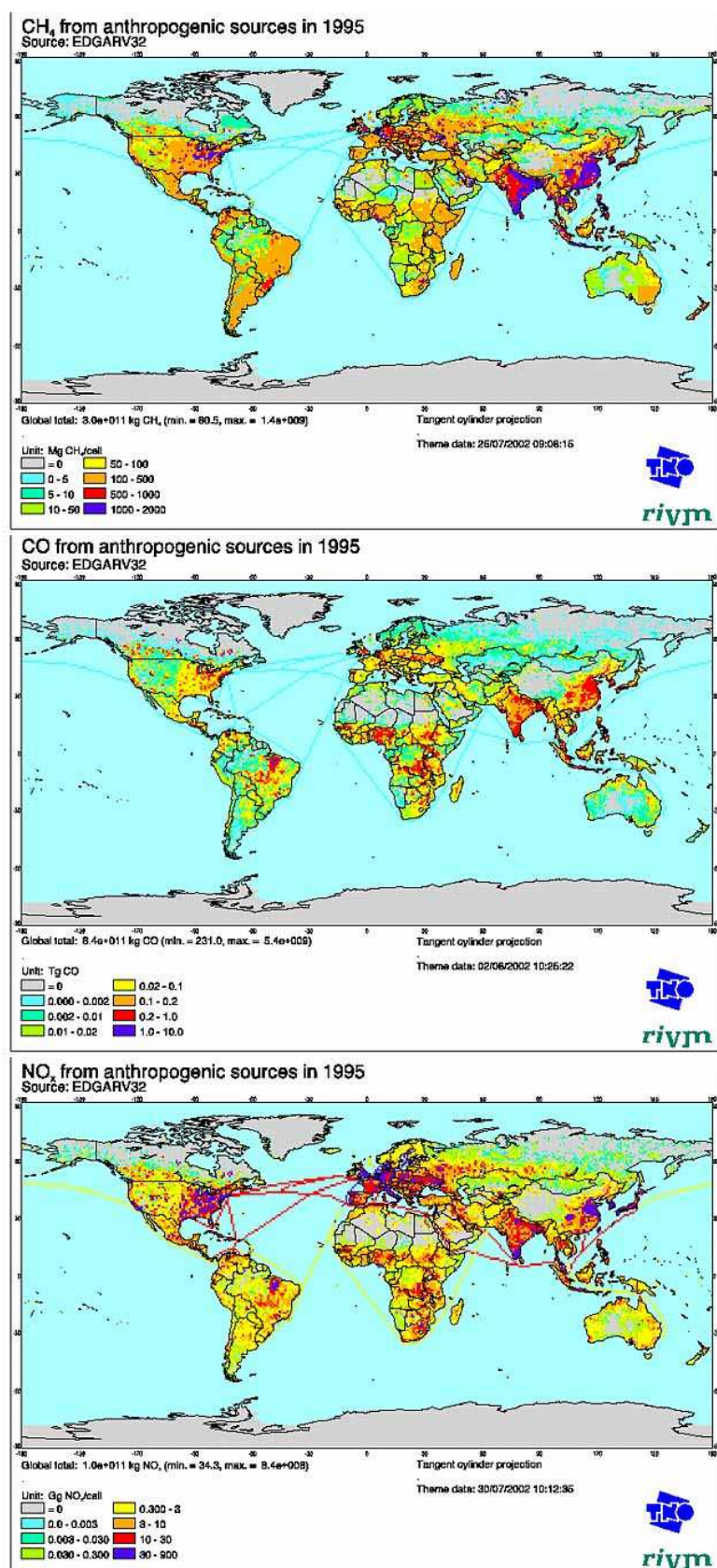


FIG. 7.4 – Inventaire EDGAR-3.2 pour les émissions anthropiques (année de référence 1995) (<http://arch.rivm.nl/env/int/coredata/edgar/index.html>) [Olivier et Berdowski, 2001].

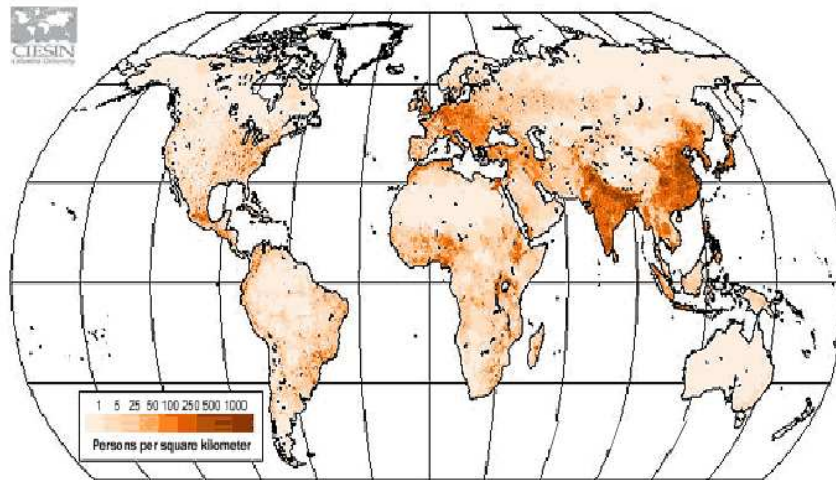


FIG. 7.5 – *Densité de population mondiale. Source : CIESIN (Center for International Earth Science Information Network.)*

La densité de population donne un premier indice des principales régions d'émission. La figure 7.5 représente le nombre d'habitants par kilomètre carré estimé pour 1995 par le CIESIN⁴ (Center for International Earth Science Information Network). Une forte densité de population est généralement associée à une pollution urbaine (utilisation de combustibles fossiles comme sources d'énergie, pour les transports en particulier) et industrielle accentuées. Le niveau de développement et les politiques énergétiques jouent ensuite un rôle important dans le niveau des émissions.

Les sources technologiques sont les mieux connues du fait de la disponibilité de données statistiques sur leur localisation, leurs activités émettrices et leurs facteurs d'émission [Logan *et al.*, 1981; Pétron, 2003], et donc les mieux estimées dans les inventaires. Les émissions technologiques n'ont d'autre part pas une variation saisonnière très marquée [Pétron, 2003]. Les inventaires EDGAR-3.2 [Olivier and Berdowski, 2001] étant réalisés en prenant l'année 1995 comme référence, les niveaux d'émission rapportés peuvent être utilisés avec une relativement bonne confiance pour identifier et localiser les émissions technologiques pour avril 1997.

D'après EDGAR-3.2, les émissions anthropiques sont généralement liées à l'utilisation de combustibles fossiles et principalement dues aux transports. Elles sont globalement majoritaires, bien que les émissions de CO dues à l'utilisation de biocarburant soient prédominantes en Afrique et dans le sud et l'est de l'Asie. Les procédés industriels ont un impact plus faible : ils ne représentent qu'environ 0.4 % des sources de CH₄, 4 % des sources de CO et 5 % des sources de NO_x. L'agriculture constitue la plus importante

⁴<http://www.ciesin.org>

source de CH_4 (environ 40 % des sources contre 30 % liées à la combustion fossile), bien qu'elle reste faible par rapport à la combustion fossile dans les pays industrialisés de l'hémisphère nord.

Combustion de la biomasse

Les feux de forêt et de savane, qu'ils soient naturels (principalement causés par la foudre) ou déclenchés par l'homme (déforestation, pratiques agricoles), constituent globalement la source de précurseurs d'ozone la plus importante dans les régions tropicales et subtropicales durant la saison sèche (entre décembre et avril au nord de l'équateur et entre août et octobre au sud).

Les feux émettent des composés carbonés (par exemple le carbone suie et le carbone organique) et du CO essentiellement, mais aussi des NO_x (tableau 1.1, [WMO, 1999]). Ces émissions dépendent fortement de l'humidité, du type de végétation et de l'historique de brûlage de la surface brûlée. Les inventaires sont donc plus difficiles à réaliser et moins précis pour ce type de sources. Les mesures satellitaires de feux et d'aérosols permettent cependant d'améliorer les estimations. Nous allons ici nous intéresser à ces mesures pour la période du 1-10 avril 1997.

Détection des feux L'Agence Spatiale Européenne (ASE) a réalisé un atlas mondial des feux⁵ pour la période août 1996 - décembre 2000 à partir des observations de l'instrument ATSR-2 (Along Track Scanning Radiometer) [Arino and Rosaz, 1999] présent sur le satellite ERS-2 (European Remote Sensing). La détection des feux depuis l'espace permet une localisation précise des feux pour chaque jour sur tout le globe. Les feux sont déduits de la température de brillance à $3.7 \mu\text{m}$ mesurée pendant la nuit (environ 22h). Le nombre de feux correspond au nombre de fois où cette température excède 308 K.

Des méthodes ont été proposées afin d'améliorer les inventaires d'émissions associées au brûlage de la biomasse en fonction du nombre de feux observés, par exemple Shultz [2002], Generoso et al. [2003] (émissions d'aérosols carbonés) ou Duncan et al., [2003] (émissions de CO). Il est cependant délicat de relier directement émissions de précurseurs et feux comptés car les composés émis et l'intensité des émissions liées aux feux de biomasse dépendent fortement de la nature de la surface brûlée. En outre, une limitation majeure de l'instrument ATSR provient du fait que la détection n'est réalisable que de nuit, bien que le brûlage atteigne un pic dans l'après-midi dû aux activités humaines (brûlage contrôlé de déchets agricoles par exemple) et aux conditions météorologiques. De plus, la détection est rendue impossible par la présence de nuages et la couverture spatiale du satellite, plus importante à haute latitude, peut également biaiser le comptage. Les régions d'intense activité de brûlage de biomasse étant principalement localisées dans les tropiques et subtropiques, le comptage des feux ATSR n'est pas un indicateur suffisant des émissions dues au brûlage de la biomasse.

Feux et aérosols De nombreuses études ont démontré la possibilité d'étudier les feux de biomasse à partir des mesures satellitaires d'aérosols (par exemple Duncan et al., [2003] ou Generoso et al. [2003]). Les feux émettent en effet de grandes quantités d'aérosols carbonés et leur observation, couplée aux comptages de feux ATSR, permet d'identifier les principales régions sources ainsi que le transport depuis ces régions.

⁵<http://shark1.esrin.esa.it/FIRE/AF/ATSR>

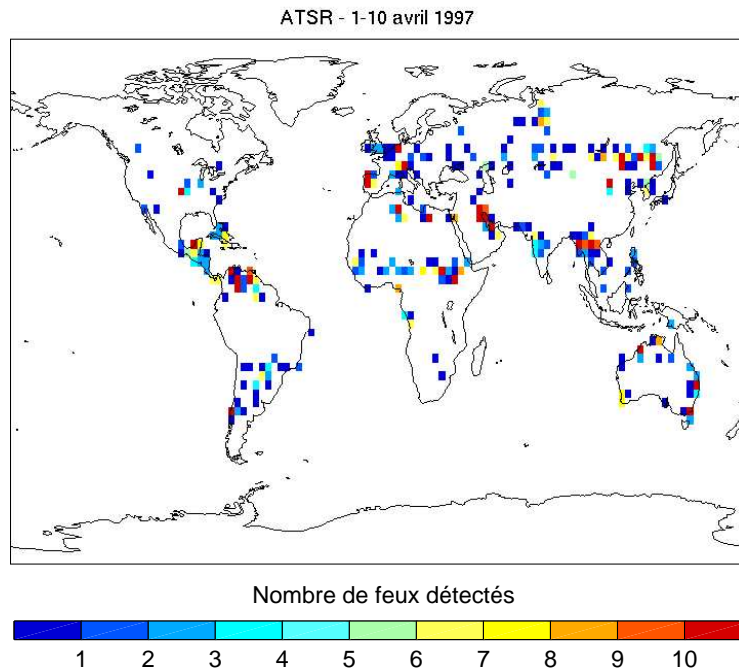


FIG. 7.6 – Nombre de feux détectés par l'instrument ATSR pendant la période du 1-10 avril 1997.

Deux instruments à bord du satellite ADEOS fournissent des mesures d'aérosols : TOMS⁶ [Herman *et al.*, 1997; Torres *et al.*, 1998] et POLDER⁷ (POLarization and Di-rectionality of the Earth Reflectances) [Deschamps *et al.*, 1994; Deuzé *et al.*, 2001].

L'indice aérosol (Aerosol Index AI) TOMS est une mesure de la dépendance spectrale de rayonnement rétrodiffusé qui résulte de la compétition entre la diffusion et/ou l'absorption par les aérosols et la diffusion Rayleigh pour une atmosphère sans aérosols [Hsu *et al.*, 1996]. Pour TOMS/ADEOS, l'AI est calculé en utilisant le rapport entre les luminances à 331 et 360 nm et est défini de sorte que les valeurs positives correspondent à des aérosols absorbant dans l'UV (poussières désertiques, cendres volcaniques et aérosols carbonés) et les valeurs négatives à des aérosols non-absorbants (sulfates). L'épaisseur optique et l'albédo des aérosols peuvent être déduits de cet AI.

L'instrument POLDER mesure le rayonnement réfléchi par les aérosols à différentes longueurs d'onde et sous différents angles, ainsi que la polarisation de ce rayonnement. Au-dessus des océans, la contribution de la surface à la luminance réfléchie est suffisamment faible pour permettre une caractérisation précise des aérosols. L'épaisseur optique et le coefficient d'Angström sont ainsi dérivés. Le coefficient d'Angström est proche de zéro pour les grosses particules et proche de 1 pour les petites particules. Au-dessus des continents, cette caractérisation est rendue impossible par la forte contribution de la surface à la luminance réfléchie. La capacité de POLDER à mesurer le rayonnement polarisé est alors utilisée [Deuzé *et al.*, 2001], la polarisation de la plupart des aérosols étant beaucoup plus importante que celle de la surface des continents. Cette méthode ne permet de détecter que les quantités de particules de petites tailles (submicroniques), résultant des émissions

⁶<http://daac.gsfc.nasa.gov/data>

⁷<http://smc.cnes.fr/POLDER/index.htm>

technologiques (combustion fossile), de la combustion de biocarburants et des feux de biomasse. La polarisation des grosses particules telles que la poussière est trop faible pour être mesurée. Un indice d'aérosol est déduit, similaire au produit de l'épaisseur optique par le coefficient d'Angström : l'AI représente la quantité de petites particules, liées à l'activité humaine. Sur la mer, il est calculé en multipliant directement l'épaisseur optique par le coefficient d'Angström. *Tanré et al.* [2001] ont montré la capacité de POLDER à mesurer les aérosols d'origine anthropique sur la mer et les continents par la détection séparée des petites particules, qui incluent, par exemple, les aérosols carbonés liés aux feux de biomasse et les sulfates liés à l'activité industrielle. Malgré les différentes méthodes utilisées au-dessus de la Terre et de la mer, il ne semble pas y avoir de discontinuité trop importante entre les différentes surfaces. L'AI POLDER est moins fiable au-dessus des surfaces enneigées car la neige génère plus de lumière polarisée que la végétation.

Chiapello et al. [2000] ont montré que les mesures des deux instruments (AI TOMS et épaisseur optique POLDER sur la mer) sont en bon accord. L'indice aérosol TOMS est cependant fortement dépendant de l'absorption des particules et de l'altitude de la couche d'aérosols puisque TOMS est moins sensible aux basses couches de l'atmosphère. Afin d'étudier les émissions et le transport de précurseurs de l'ozone liés aux activités de brûlage de la biomasse, il est préférable d'utiliser en priorité l'AI POLDER, qui permet d'observer la pollution dans la couche limite et n'est pas affecté par la présence de poussières désertiques.

La figure 7.7 représente les AI TOMS et POLDER pour la période qui nous intéressent (une moyenne sur les observations disponibles a été calculée). Les deux distributions mettent bien en évidence les différences entre les deux instruments.

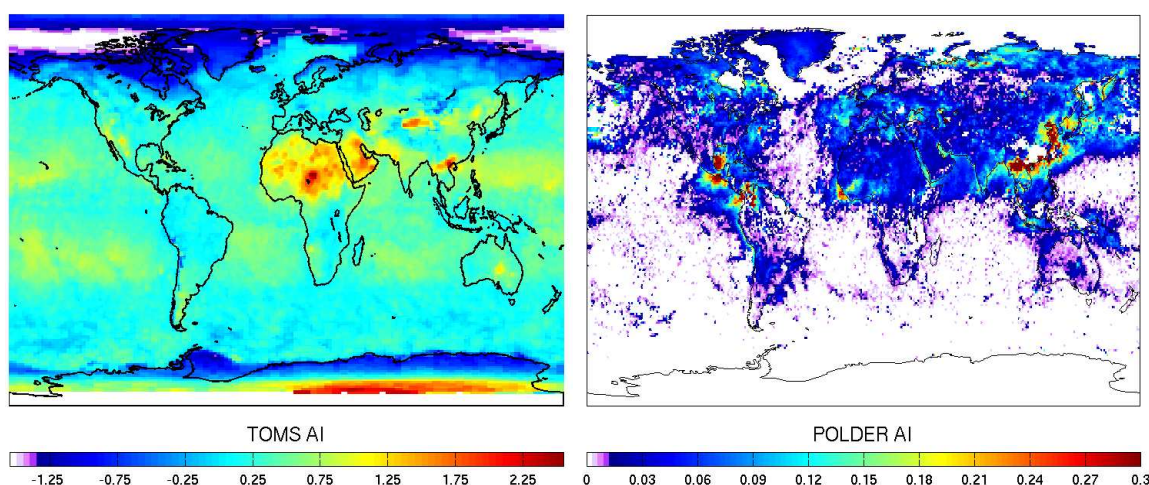


FIG. 7.7 – Indices aérosols dérivés des instruments TOMS (à gauche) et POLDER (à droite) pour la période du 1^{er} au 10 avril 1997. Attention, ces deux indices ne représentent pas la même quantité (cf. texte).

Sources naturelles

Comme nous l'avons précisé, il est important de considérer les émissions biogéniques afin d'estimer les sources de CO (végétation) et de NO_x (sols). De même, les éclairs représentent une forte source de NO_x.

Les émissions biogéniques sont difficiles à quantifier et les estimations sont très incertaines. Différentes études ont montré la possibilité d'évaluer les émissions biogéniques à partir de mesures satellitaires. D'après l'étude de *Pétron* [2003] reposant sur l'analyse du CO MOPITT au printemps, les émissions de CO associées à la végétation (par l'intermédiaire de l'oxydation des hydrocarbures non-méthaniques qu'elle émet) ont lieu en majorité dans les tropiques (forêts tropicales du nord de l'Amérique du Sud et Afrique Centrale) et aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord (est de l'Amérique du Nord et sud-est de l'Asie en particulier). La contribution des émissions par les sols dans les sources de NO_x est importante. Elle représente environ 10 % des sources [WMO, 1999; IPCC, 2001]. L'amplitude de ces émissions dépend de la couverture végétale mais aussi de l'humidité du sol, de sa température, de sa richesse en éléments nutritifs et du taux de nitrification [Yienger et Levy, 1995]. Ces émissions sont en outre stimulées par l'utilisation d'engrais ou par les pratiques de brûlage de la biomasse. Cette source est donc accentuée par les activités agricoles et n'est pour cette raison pas entièrement naturelle. D'après les travaux de *Martin et al.* [2003] à partir du NO_2 GOME, les émissions de NO_x par les sols sont généralement sous-estimées au-dessus de l'ouest des États-Unis, du Sahel et de l'Europe.

L'indice de végétation normalisé (Normalized Differential Vegetation Index, NDVI) fourni par l'instrument POLDER [Deschamps et al., 1994; Leroy et al., 1997], représenté sur la figure 7.8, permet d'avoir une vue globale de la couverture végétale en avril 1997. Le NDVI est déduit des réflectances bidirectionnelles de surface calculées en corrigeant l'effet de la diffusion moléculaire sur les mesures POLDER. Nous utiliserons cette distribution comme indicateur des émissions biogéniques.

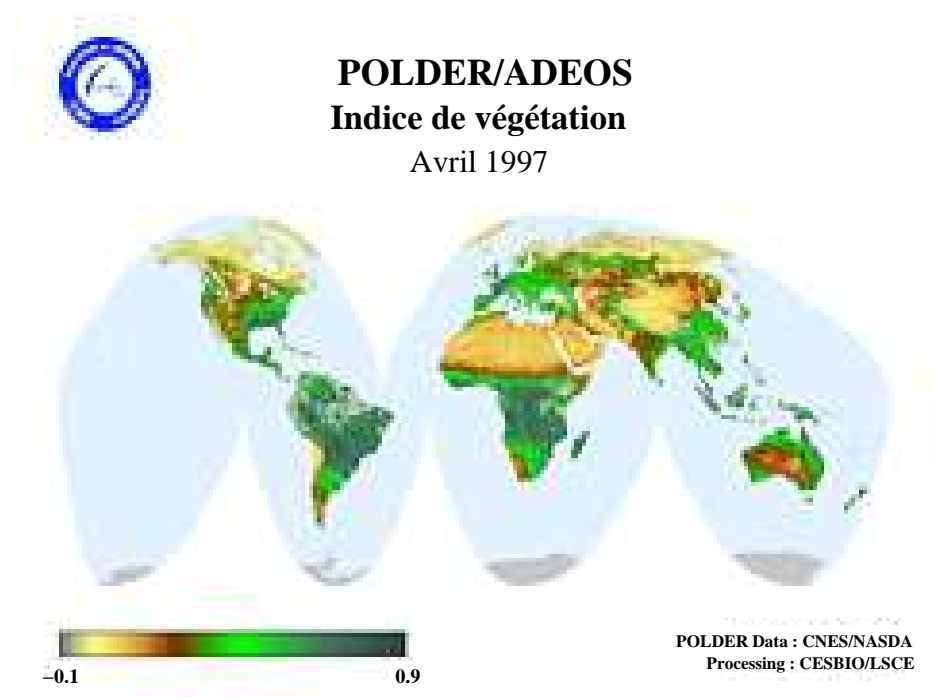


FIG. 7.8 – Indice de végétation moyen observé par POLDER/ADEOS en avril 1997 (http://smc.cnes.fr/POLDER/A_produits_scie.htm).

Bien que les zones concernées soient très étendues, l'amplitude de ces émissions bio-

géniques est plus faible que celle des émissions anthropiques associées aux combustibles fossiles, aux biocarburants et aux feux [Pétron, 2003].

Les éclairs peuvent être localisés en utilisant les mesures de l'instrument OTD⁸ (Optical Transient Detector) [Christian et al., 1989]. OTD a volé entre avril 1995 et mars 2000 à bord du satellite MicroLab-1 (NASA). Il détecte et localise les éclairs (intra-nuageux et nuage-sol, de jour comme de nuit). Pour chaque éclair détecté, l'instrument enregistre la date/heure de son occurrence et son énergie avec une résolution spatiale de 10 km et une résolution temporelle de 2 ms. Son efficacité est estimée à 56 % la nuit et est diminuée d'environ 10 % le jour [Christian et al., 2003].

La figure 7.9 représente le nombre de flashes par km² détectés par l'instrument pour le mois d'avril 1997. Cette distribution permet de localiser les régions sources d'émissions de NO_x associées aux éclairs.

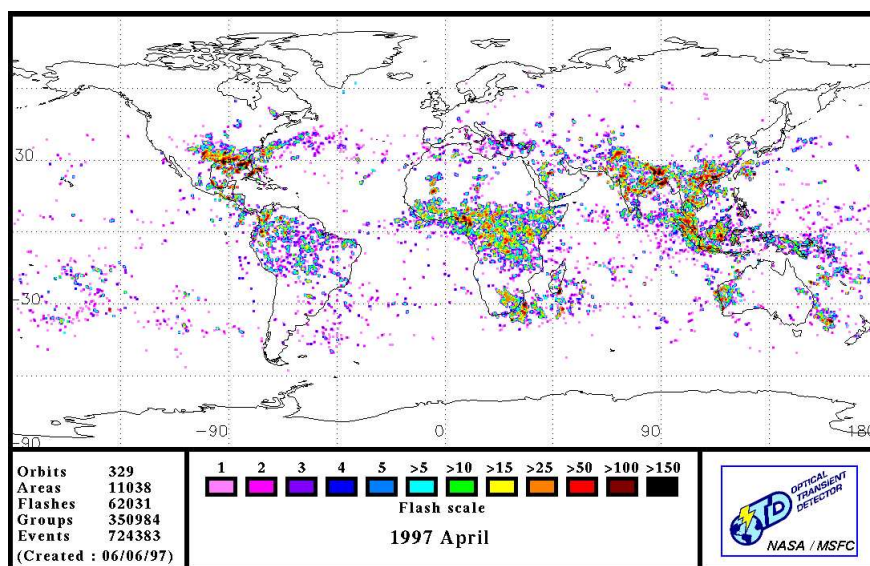


FIG. 7.9 – Nombre d'éclairs par km² détectés par l'instrument OTD en avril 1997.

7.1.3 Localisation des sources de précurseurs détectées

Un bilan région par région des différentes sources de CO et de NO_x peut être réalisé en utilisant les informations sur la distribution des émissions. Le CH₄, ayant une longue durée de vie et donc affecté par le transport à l'échelle globale, peut être observé loin de ses sources. Sa distribution est donc plus difficile à interpréter. Nous n'étudierons pas les sources spécifiques à cette molécule (terres inondées, rizières, etc.).

Afrique : Le continent africain est globalement peu peuplé, hormis la côte nord et le centre-ouest, et est faiblement industrialisé. D'après EDGAR-3.2, les émissions liées à l'utilisation de combustibles fossiles sont relativement faibles mais des émissions assez importantes peuvent être associées à l'utilisation de biocarburants. Ceci a été confirmé par l'étude de Pétron [2003] sur les émissions de CO estimées à partir des mesures de l'instrument MOPITT.

⁸<http://thunder.nsstc.nasa.gov/data/OTDsummaries/>

Dans cette région, la principale pollution est due aux feux de biomasse. L'instrument ATSR compte un grand nombre de feux dans le centre et dans le nord de l'Afrique en avril. Des feux sont également détectés au-dessus du Moyen-Orient. Ils ne sont pas nécessairement liés à des feux de végétation mais plutôt à l'industrie pétrolière.

D'après l'AI TOMS, la quantité d'aérosols la plus élevée se trouve au-dessus de l'Afrique du Nord et du Moyen Orient. Ces maxima peuvent difficilement être dus à la combustion de biomasse, d'autant que l'on se trouve ici dans des régions principalement désertiques. Ces fortes concentrations correspondent plutôt à des poussières désertiques, qui ne sont pas détectées par POLDER au-dessus des continents. Dans cette région, POLDER observe un nombre élevé d'aérosols au-dessus de l'Afrique centrale seulement, ce qui correspond bien aux feux comptés par ATSR. La combustion de biocarburants pourrait également contribuer à ce fort AI POLDER.

La végétation est d'autre part très abondante dans toute la partie centrale et sud de cette région. Elle est très probablement associée à des émissions biogéniques importantes (par la végétation et par les sols), en particulier dans les tropiques où les émissions sont accentuées par les températures élevées, l'humidité et la fertilisation des sols par le brûlage de la biomasse.

Un grand nombre d'éclairs est mesuré par l'instrument OTD, principalement au-dessus de l'Afrique tropicale et de l'extrême sud-est du continent, ainsi qu'au-dessus de Madagascar.

Les sources les plus importantes seront donc dans cette région le brûlage de la biomasse, la combustion de biocarburants et les éclairs. Les sources biogéniques devraient également être importantes, en particulier les émissions de NO_x par les sols brûlés d'Afrique centrale.

Amérique du Nord : La densité de population est ici aussi très hétérogène. Toute la partie nord (nord du Canada, Alaska) est très faiblement peuplée et, au sud du Canada et aux États-Unis, la population est concentrée autour de grands pôles urbains, principalement à l'est et l'ouest de la région. Le niveau de développement et d'industrialisation est très élevé, ce qui va impliquer une pollution liée à des émissions technologiques (urbaines et industrielles) et agricoles très importantes.

ATSR détecte peu de feux. Cependant, bien que l'AI TOMS soit faible, l'AI POLDER est élevé au nord-est des États-Unis. Les aérosols détectés par POLDER sont donc certainement associés à une pollution urbaine et industrielle. À l'ouest des États-Unis, l'AI TOMS est élevé alors que l'AI POLDER est moins important, hormis au-dessus du sud-ouest de la région. Dans cette région, le fort AI TOMS est certainement associé à des poussières désertiques. L'AI POLDER relativement élevé au-dessus du sud-ouest est dû à une pollution urbaine et industrielle, la densité de population étant ici plus importante.

La végétation importante dans une grande partie est et à l'ouest de la région sera associée à des émissions biogéniques relativement importantes, accentuées par les pratiques agricoles (utilisation d'engrais chimiques).

L'instrument OTD mesure d'autre part un grand nombre d'éclairs sur le sud-est des États-Unis et sur l'ouest de l'océan Atlantique.

Les sources à considérer seront donc ici les sources technologiques principalement ainsi que les éclairs et, dans une moindre mesure, les sources biogéniques.

Amérique centrale et Amérique du Sud : Dans cette région, la population est localisée en Amérique centrale et sur la côte est du continent sud-américain. Tout comme

l'Afrique, l'Amérique du Sud est globalement peu industrialisée. Les émissions technologiques liées à la consommation de combustibles fossiles (transports) et de biocarburants seront importantes autour des grandes agglomérations, mais généralement faibles sur la région.

De nombreux feux sont mesurés par ATSR en Amérique centrale. L'AI TOMS n'est pas très élevé alors que l'AI POLDER révèle une pollution importante, qui peut être associée à la forte densité de population (sources technologiques liées à la combustion fossile et de biocarburants), ou aux feux de biomasse. L'AI TOMS faible pourrait être dû à la faible sensibilité de TOMS aux basses altitudes de l'atmosphère. La pollution en Amérique centrale est donc probablement confinée dans les basses couches de l'atmosphère. En Amérique du Sud, quelques feux sont mesurés par ATSR. TOMS et POLDER ne mesurent cependant pas de quantités significatives d'aérosols dans cette région. L'AI TOMS est relativement élevé à l'extrême sud du continent, où aucun feu n'est détecté par ATSR, et est probablement associé à la présence de poussières désertiques car cette région est très aride.

La couverture végétale est importante dans toute la partie nord de l'Amérique du Sud (forêt amazonienne), impliquant des sources biogéniques de précurseurs. Les températures élevées et l'humidité importante de cette région tropicale favorisent en outre les émissions.

Des éclairs sont mesurés par OTD en Amérique centrale, dans la partie nord de l'Amérique du Sud, ainsi que sur l'Atlantique Sud.

Tout comme pour l'Afrique, les sources liées à la combustion de la biomasse, à la combustion de biocarburants et aux éclairs semblent majoritaires. Les émissions biogéniques sont également importantes dans le nord de la région.

Asie : L'Asie est la région la plus peuplée de la planète. Dans toute la partie sud et est de cette région (Inde, Chine), les densités de population dépassent généralement 200 habitants/km². La forte population implique une forte pollution liée aux transports et à l'usage domestique de sources d'énergie (combustibles fossiles et/ou biocarburants). L'industrialisation et le développement sont cependant relativement variables sur la région. D'après les inventaires EDGAR-3.2, les émissions industrielles sont importantes au Japon et dans l'est de l'Asie mais relativement faibles dans le sud.

ATSR mesure des feux au nord et au sud de la région qui coïncident avec un AI TOMS élevé. L'AI POLDER est important sur toute la partie est et sud-est de la région, indiquant une forte pollution urbaine et industrielle s'additionnant aux feux dans le nord, et résultant principalement des feux dans le sud-est. En Inde, quelques feux sont observés par ATSR mais l'AI POLDER reste relativement faible. Le fort AI TOMS est plutôt à associer au transport de poussières désertiques depuis l'Afrique du Nord et le Moyen-Orient.

La végétation est importante dans toute la partie sud-est de l'Asie ainsi que sur les côtes indiennes. Cette couverture végétale importante sera associée à des émissions par la végétation et les sols, stimulées par les feux et l'utilisation d'engrais dans les régions agricoles.

OTD détecte également un nombre important d'éclairs sur toute la partie sud de la région.

Les différentes sources de précurseurs seront donc ici difficiles à distinguer.

Europe : L'Europe est une région fortement peuplée et fait partie des plus grandes régions industrialisées. Les inventaires EDGAR-3.2 attribuent une grande partie des sources à l'utilisation de combustibles fossiles et à l'activité industrielle.

Peu de feux sont détectés par ATSR et l'AI TOMS est très faible. Comme pour l'Amérique du Nord, l'AI POLDER élevé semble être plutôt associé à des émissions technologiques importantes, bien que l'enneigement puisse, encore au printemps, biaiser les observations POLDER.

La végétation importante et la présence de grandes régions agricoles pourraient être à l'origine d'émissions biogéniques importantes.

Le nombre d'éclairs mesurés par OTD est quasiment nul.

Les sources de précurseurs sont donc dans cette région principalement liées à l'utilisation de combustibles fossiles et aux activités industrielles.

7.2 Transport

Comme nous l'avons déjà noté, la durée de vie du CO est suffisamment longue pour observer un transport dans le vent des régions sources. De même, l'O₃, dont la durée de vie s'étend de quelques semaines à quelques mois, pourra former des panaches dans le vent des régions de production. Celle du NO₂ est en revanche trop courte pour permettre un transport efficace, alors que celle du CH₄ est trop longue pour distinguer des panaches. Afin de comprendre les distributions de précurseurs et leur relation avec les distributions d'O₃, une étude du transport des polluants devra donc être réalisée.

Les principaux processus dynamiques d'exportation de composés chimiques depuis une région source sont la convection profonde (transport vertical très rapide, processus de transport vertical le plus efficace dans les tropiques), les épisodes de transport vertical non-convectif plus lent (associé aux systèmes de pression et au passage de fronts, dominants aux moyennes latitudes) et l'advection horizontale. Ces mécanismes de transport sont détaillés dans la section 1.2. L'importance relative de ces différents mécanismes est extrêmement dépendante de la région et de la saison considérées.

Stohl et al. [2002] ont analysé les caractéristiques générales du transport inter-continental (trajectoires et constantes de temps associées) en réalisant des simulations sur un an, basées sur les analyses ECMWF, du transport d'un traceur passif émis au-dessus des continents suivant un inventaire des émissions de CO. Cette méthode permet de suivre le transport des masses d'air polluées en fonction de leur âge (les figures sont disponibles sur internet à l'adresse <http://www.fw.tum.de/EXT/LST/METEO/itct/itct.html>).

En se basant sur cette analyse ainsi que sur les champs de vents analysés ECMWF, représentés sur la figure 7.10, et sur les mesures de couverture nuageuse de POLDER [*Parol et al.*, 1999], représentés sur la figure 7.11, nous allons dans cette partie explorer les processus de transport prédominants au cours de la période 1-10 avril 1997 pour les grandes régions sources de précurseurs de l'O₃.

Les principales caractéristiques du transport décrites dans la section 1.2 se retrouvent aisément sur les champs de vents ECMWF. Les jets polaires et subtropicaux sont bien visibles (vents d'ouest sur les champs à 500 hPa), ainsi que les alizés dans les tropiques (vents de nord-est dans l'hémisphère nord et de sud-est dans l'hémisphère sud sur les champs à 1000 hPa). Nous pouvons noter que les vents dans la basse troposphère sont généralement nettement moins intenses au-dessus des continents qu'au-dessus des océans.

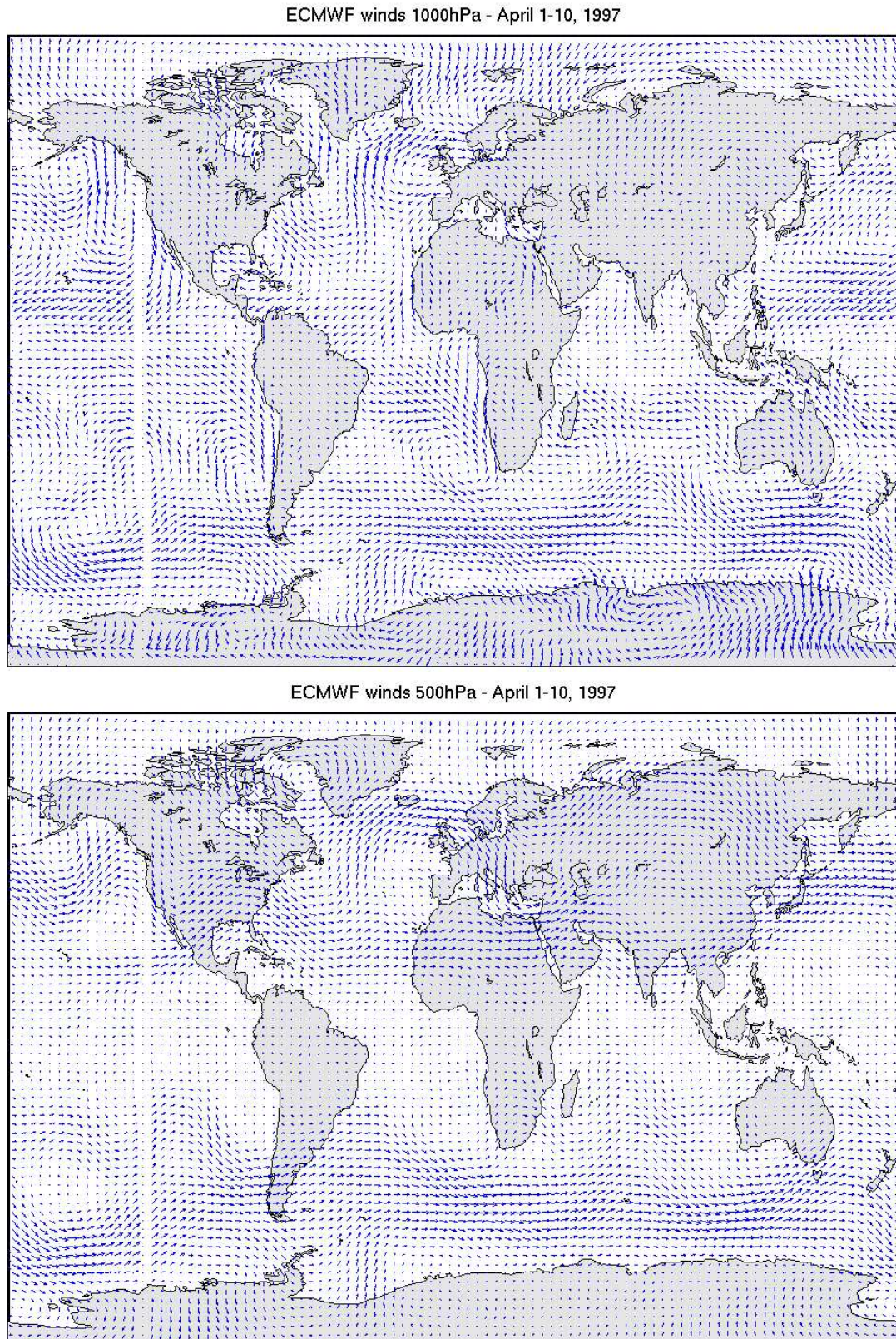


FIG. 7.10 – Composantes horizontales des champs de vents ECMWF moyennés sur la période 1-10 avril 1997 représentés à la surface (1000 hPa) et à 500 hPa (troposphère libre).

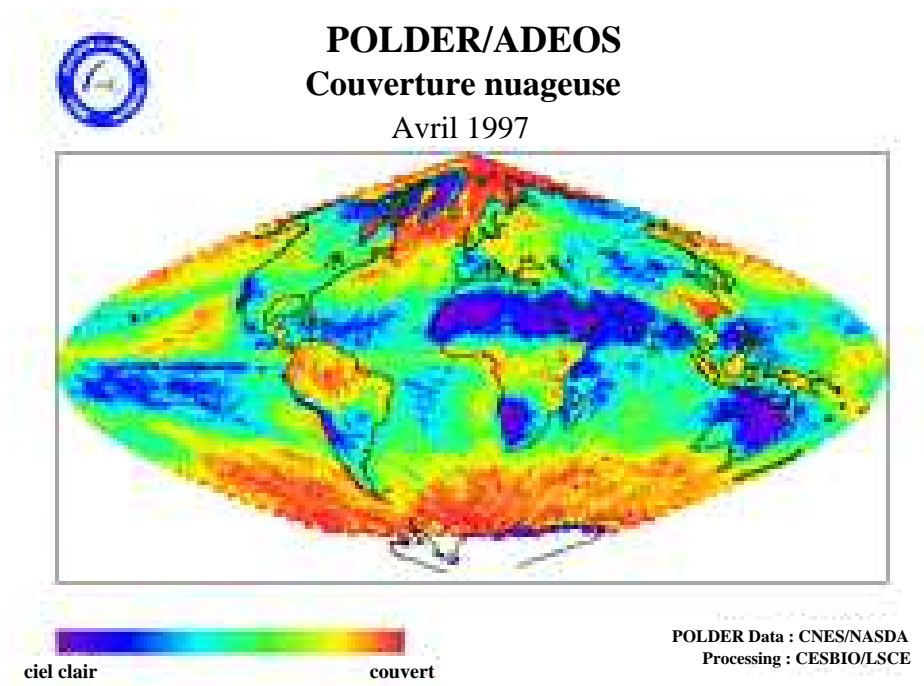


FIG. 7.11 – Couverture nuageuse moyenne observée par POLDER/ADEOS en avril 1997 (http://smc.cnes.fr/POLDER/A_produits_scie.htm).

Les ondulations du jet dans la troposphère libre associées aux instabilités baroclines, qui correspondent à des centres de basses pressions fermés au niveau de la surface, peuvent également être observées.

La couverture nuageuse POLDER permet de distinguer les principales zones de convection nuageuse et de soulèvements frontaux. La zone de convergence inter-tropicale (ITCZ) est bien visible, avec une fine bande nuageuse dans les tropiques accentuée au niveau des continents.

Afrique : L'étude de traceurs de *Stohl et al.* [2002] montre que les émissions africaines subissent un fort transport vertical mais restent confinées dans les tropiques du fait des fortes barrières que constituent les jets subtropicaux. La majeure partie se déplace lentement à travers l'Atlantique et atteint l'Amérique en 25 à 30 jours. Les traceurs provenant des extrémités nord et sud de cette région peuvent cependant être injectés dans les jets de moyennes latitude. Des traceurs d'Afrique du Sud peuvent ainsi traverser l'Océan Indien et atteindre l'Australie en seulement quelques jours.

D'après les vents ECMWF, le transport dans la basse troposphère est réalisé principalement par les alizés vers l'ouest et implique un transport des polluants africains vers l'Atlantique tropical et l'Amérique du sud. La convergence au niveau de l'ITCZ permet un transport vertical efficace des masses d'air. Les vents dans la troposphère libre permettent un transport rapide au-dessus de l'Afrique du Nord dans le jet subtropical vers l'est, c'est-à-dire vers le Moyen-Orient, l'Inde puis l'Asie. Au-dessus de l'Afrique du Sud, le jet subtropical peut également entraîner les masses d'air vers l'est (moins rapidement cependant).

Amérique du Nord : *Stohl et al.* [2002] montrent que le transport zonal de traceurs nord-américains est très rapide dans les régions extra-tropicales de l'hémisphère nord avec quasiment aucun transport vers l'hémisphère sud. Le transport méridien est caractérisé par le mouvement vers l'est le plus rapide des traceurs de l'hémisphère nord. Une faible portion des traceurs de l'ouest de la région sont transportés vers le Pacifique. Cependant, ces traceurs exportés peuvent tourner autour de l'anticyclone sub-tropical localisé sur l'est de l'océan Pacifique et ainsi retourner en Amérique du Nord à des latitudes plus élevées.

Les vents ECMWF sont en bon accord avec cette description. Les vents d'ouest s'étendent jusqu'à la surface. Il sont particulièrement importants au large de la côte est américaine au-dessus de l'Atlantique nord ("storm-track" Atlantique). Les vents semblent indiquer une zone de convergence au-dessus du centre et du sud-est des États-Unis qui peut élever les masses d'air depuis la surface jusqu'à la troposphère libre. Ce soulèvement en avant des fronts froids est appelé "warm-conveyor-belt" et est très fréquent au printemps dans cette région [*Stohl et al.*, 2001]. La couverture nuageuse POLDER met en évidence des nuages associés aux systèmes de basses pressions au-dessus du nord-ouest de l'océan Atlantique. Ces nuages sont dûs à la convergence (et à l'ascendance associée) des masses d'air dans la dépression. Dans la troposphère libre, les masses d'air sont rapidement transportées par les vents d'ouest avec deux trajectoires possibles : l'une contourne l'anticyclone des Açores vers le nord et implique un transport vers l'Europe et l'autre le contourne vers le sud et implique un transport vers l'Afrique du nord, le Moyen-Orient et le sud de l'Asie. À l'ouest de la région, au niveau de la surface, l'anticyclone subtropical est bien visible et entraîne effectivement les masses d'air vers les plus hautes latitudes. La zone de convergence entraîne un mouvement convectif et la formation de nuages (visibles sur les observations POLDER). Une fois dans la troposphère libre, les masses d'air sont transportées vers l'Amérique du Nord par les vents d'ouest, se confondant avec les masses d'air provenant d'Asie. Les alizés (à basse altitude) peuvent également rapidement transporter les masses d'air des moyennes latitudes vers le Pacifique tropical.

Amérique du Sud : D'après *Stohl et al.* [2002], 6 à 8 jours suffisent à mélanger verticalement les traceurs sur toute la hauteur de la troposphère. Comme en Afrique, le transport méridien de traceurs est très lent. Le transport zonal est cependant plus rapide. La plupart des traceurs se dirigent initialement vers le Pacifique, mais les émissions de l'extrême sud du continent peuvent être advectées dans l'Atlantique et atteindre l'Afrique du sud en quelques jours.

Les données dont nous disposons pour avril 1997 sont en bon accord avec ce comportement. Les vents ECMWF mettent en évidence la zone de convergence tropicale qui entraînera une forte convection au nord de la région, associée à une forte couverture nuageuse (POLDER) et à un transport vertical rapide. Au nord de la région, le transport zonal de masses d'air est réalisé vers le Pacifique par les alizés (dans la basse atmosphère). Au sud, les masses d'air sont entraînées vers l'Atlantique par le jet subtropical. Au sud-ouest, les masses d'air peuvent subir un transport vers le Pacifique puis contourner le centre de basses pressions avant d'être entraînées par les vents d'ouest.

Asie : *Stohl et al.* [2002] montrent qu'au bout de 6-8 jours, les traceurs restent proches de leur région source sauf ceux qui sont entraînés dans le storm-track Pacifique (autour de 30°N). Cette accélération du jet peut entraîner les traceurs jusqu'en Amérique du Nord et au-delà. Les warm-conveyor-belts sont supposées responsables du transport vers

la troposphère libre. Les traceurs émis plus au sud de la région (en Inde en particulier) se dirigent vers l'équateur avec les alizés. Au bout de 25-30 jours, au nord de 10°N, les traceurs sont mélangés sur toute la troposphère horizontalement et verticalement, alors qu'au sud, un panache est toujours bien visible au-dessus de l'Indonésie et de l'océan Indien. L'étude montre d'autre part peu de mélange avec l'hémisphère sud extratropical.

Les alizés dans la basse atmosphère, localisés au-dessous de 30°N, permettent un transport vers l'équateur et vers l'ouest. Dans la troposphère libre en revanche, les forts vents d'ouest permettent un transport rapide vers l'est, à travers le Pacifique. Dans le Pacifique, deux trajectoires semblent ensuite se dessiner permettant un transport vers l'Amérique du Nord d'une part et l'Amérique centrale d'autre part. Les masses d'air seront soulevées par des mouvements convectifs. La rencontre des masses d'air froid provenant du nord (anticyclone de Sibérie) et des masses d'air tropical océanique provenant du sud (alizés) implique une zone de convergence au-dessus du centre de la Chine, associée à une forte couverture nuageuse bien identifiée par POLDER. Les warm-conveyor-belts au-dessus du Pacifique ont leur point de départ principalement dans cette région (sud-est de l'Asie) [Stohl *et al.*, 2001].

Europe : L'étude des traceurs de Stohl *et al.* [2002] montre que le transport par les vents d'ouest est dominant dans cette région. La cyclogénèse est moins fréquente qu'au niveau des côtes est des continents américains et asiatiques car l'Europe se situe à la fin du storm-track Atlantique. Les warm-conveyor-belts sont aussi moins fréquentes et moins intenses dans cette région [Stohl *et al.*, 2001]. Le transport convectif est donc moins important et les traceurs ont tendance à rester dans la basse troposphère. Une grande partie des traceurs européens est advectée vers l'Arctique. Il peut également exister un panache secondaire au-dessus de l'Atlantique, autour de 15°N environ, dû au transport de traceurs émis au sud de l'Europe vers le bassin méditerranéen et l'Afrique du Nord.

Nous retrouvons ces grandes caractéristiques sur les champs de vent ECMWF. Les vents de surface sont relativement faibles. Ils semblent entraîner les masses d'air vers le bassin méditerranéen puis l'Afrique du Nord, ou vers l'Atlantique. Elles peuvent alors contourner l'anticyclone des Açores puis être transportées vers l'Amérique du Nord (en contournant la dépression d'Islande) ou retourner vers l'Europe avec les vents d'ouest, ou bien être entraînées vers l'Atlantique tropical par les alizés. Il peut alors y avoir un transport vertical vers la troposphère libre. La couverture nuageuse observée par POLDER est relativement importante au-dessus de l'est de l'Atlantique et montre qu'il y a convection à cette période. La couverture nuageuse est cependant très faible sur l'Europe de l'ouest. Dans la troposphère libre, deux trajectoires se distinguent également : l'une le nord-est, transportant les masses d'air dans le jet polaire vers l'Arctique puis vers l'Asie, et l'autre vers le sud, transportant les masses d'air vers le bassin méditerranéen puis vers l'Est dans le jet subtropical.

7.3 Premier bilan global

Pour chacune des régions étudiées, nous allons dans cette partie tenter d'utiliser les distributions des sources et des précurseurs en tenant compte des processus de transport afin d'interpréter les distributions d'O₃ troposphérique obtenues.

Comme nous l'avons déjà précisé, la durée de vie du CH₄ est trop importante pour

pouvoir réaliser une étude de processus précise. Les données spatiales sur cette espèce seront donc difficilement exploitables par rapport aux NO_x , caractéristiques des zones d'émissions, et au CO, transporté dans le vent des zones polluées.

Afrique : D'après le bilan des sources de précurseurs, les fortes concentrations de NO_2 observées dans le centre de la région sont le résultat d'émissions à la fois des biocarburants, des feux de biomasse, des sols (stimulés par les activités de brûlage et l'humidité) et des éclairs. Il faut cependant noter que les études de *Martin et al* [2002b] ont montré que l'instrument GOME est moins sensible aux concentrations de NO_2 dans la haute troposphère, rendant difficile la détection d'émissions liées aux éclairs. Dans le sud-est, la forte quantité de NO_2 observée peut être attribuée aux activités industrielles importantes dans la région de Johannesburg. Les fortes concentrations de CO sur le continent africain s'expliquent principalement par les feux de biomasse nombreux dans le nord et le centre. L'utilisation de biocarburants émet également une quantité importante de CO et les émissions par la végétation peuvent contribuer aux forts maxima dans cette région. Les fortes concentrations de CO et les concentrations relativement élevées de NO_2 dans le nord de la région et au-dessus du Moyen-Orient peuvent en partie être attribuées aux émissions technologiques.

La pollution africaine peut être transportée par les alizés à travers l'Atlantique tropical vers l'Amérique du Sud. Une autre voie est le transport vers l'est par le jet subtropical au-dessus de l'Afrique du Nord et de l'Afrique du Sud. Nous pouvons en effet observer de fortes colonnes de CO au-dessus de l'Atlantique tropical, même si le manque de mesures IMG conservées ne permet pas une distinction nette du panache. Un apport de pollution provenant de l'Europe ou de l'Amérique du Nord peut également affecter l'Afrique du Nord, ce qui pourrait contribuer aux fortes colonnes de CO dans cette région.

Les distributions d' O_3 troposphérique observées sont proches des distributions de CO. Des colonnes relativement fortes sont observées en Afrique centrale, où la plupart des émissions ont lieu. Bien que ces fortes quantités d' O_3 semblent s'étendre au-dessus de l'Atlantique tropical, le manque de mesures IMG ne permet de distinguer clairement le panache. Les fortes valeurs en Afrique du Nord sont difficiles à interpréter. Elles pourraient être dues à une production *in situ* accentuée par l'importation de pollution depuis l'Europe et/ou l'Amérique du Nord. Les panaches observés au-dessus de la partie sud et ouest de l'Atlantique Nord semblent appuyer cette théorie : des concentrations d'ozone relativement élevées sont en effet observées sur les voies efficaces de transport identifiées dans la partie précédente. Un maximum d'ozone au-dessus du Moyen-Orient a été identifié en été par *Li et al.* [2001] à partir de simulations de modèle atmosphérique et a été attribué principalement au transport de pollution depuis les moyennes latitudes par les vents d'ouest, au transport depuis l'Asie et aux éclairs. Ici, le transport depuis l'Europe et l'Asie joueront également un rôle important, mais le fort NO_2 semble indiquer une source locale.

Un panache d'ozone est également observé dans l'hémisphère sud au large du sud-ouest de l'Afrique. Même si ce maximum correspond bien à un maximum de CH_4 , il ne correspond pas aux les sources de précurseurs identifiées précédemment. Nous avons déjà abordé ce phénomène lors de l'étude des mesures d'ozone troposphérique de l'instrument TOMS pour la validation (partie 6.2.3). Ce "paradoxe Atlantique" apparent, très fort sur les mesures TOMS, a été mis en évidence par *Thompson et al.* [2000,2001] et semble en bon accord avec les mesures *in situ* d'ozone. *Martin et al.* [2002a] et *Edwards et al.* [2003]

ont montré qu'une grande partie du paradoxe s'explique par la moins bonne sensibilité de TOMS à la basse troposphère mais qu'il est également dû aux éclairs, source de précurseurs d'O₃ dans l'hémisphère sud, ou au transport inter-hémisphérique des précurseurs de l'O₃ à travers la zone de convergence.

Des éclairs sont observés par OTD de part et d'autre de l'équateur, même si le maximum de NO₂ GOME semble plutôt localisé dans l'hémisphère Nord (moins bonne sensibilité à la haute troposphère). Le maximum de NO₂ à l'extrême sud-est du continent pourrait également expliquer les fortes quantités d'O₃ en Afrique du Sud. Une production dans cette région pourra ensuite être transportée à la fois vers l'océan Indien par le jet subtropical et vers l'Atlantique Sud et l'Atlantique tropical par les alizés.

Tout comme dans le cas de TOMS, une légère sous-estimation de l'ozone troposphérique par IMG pourrait expliquer les relativement faibles concentrations au-dessus de l'Afrique tropicale et de l'Atlantique tropicale : les précurseurs sont en effet dans ce cas émis dans la basse troposphère (par les feux et les biocarburants).

Amérique du Nord : Les fortes concentrations de CO et de NO₂ dans cette région sont en majeure partie associées aux émissions technologiques, extrêmement fortes dans le nord-est et le sud-ouest des États-Unis. Des émissions biogéniques de NO_x par les sols peuvent contribuer aux fortes concentrations de NO₂ observées même au-dessus de régions plus rurales (fortes émissions liées à l'agriculture intensive). Les émissions biogéniques de CO par la végétation sont également importantes mais restent beaucoup plus faibles que les émissions technologiques [Pétron, 2003]. Au-dessus du sud-est des États-Unis et de l'Atlantique Ouest, des émissions de NO_x importantes peuvent être associées aux éclairs. Dans le Pacifique, des concentrations importantes de NO₂ sont inversées par *Martin et al.* [2002b] mais pas par *Richter et Burrows* [2002].

Les fortes colonnes de CO au-dessus de l'Atlantique mettent en évidence l'importance du transport trans-atlantique. Elles sont particulièrement importantes au-dessus du sud-ouest de l'Atlantique. Cette trajectoire pourrait donc être plus importante. De même, les fortes colonnes à l'ouest de la côte ouest de la région, qui semblent se diriger vers le nord, pourraient être dues à un transport de pollution venant du sud-ouest. Elles pourraient cependant également être associées au transport de polluants asiatiques.

Pour cette région encore, les colonnes d'O₃ troposphérique sont en bon accord avec les distributions de ses précurseurs. Des colonnes importantes sont observées sur une grande partie de la région. Les très fortes concentrations de précurseurs au nord-est de la région ne semblent pas associées à des concentrations d'O₃ particulièrement élevée. Ceci pourrait être dû au fait que la production d'O₃ est limitée par de trop fortes concentrations de NO_x. Cependant, nous avons vu au chapitre précédent que notre méthode a tendance à sous-estimer l'O₃ troposphérique aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord. Il faut donc rester prudent dans l'interprétation de ces distributions.

Le transport décrit pour le CO est également observé pour l'O₃. Les deux trajectoires de transport au-dessus de l'Atlantique sont plus clairement visibles : deux panaches sont observés au nord et au sud de l'Atlantique Nord. Un panache d'O₃ est d'autre part observé à l'est du Pacifique et semble correspondre à un transport depuis le sud-ouest de la région.

Li et al. [2002] ont montré, grâce à un modèle de chimie-transport, que le transport trans-atlantique est fortement corrélé à l'indice de NAO (North Atlantique Oscillation). D'après cette étude, les polluants nord-américains peuvent avoir un impact important sur l'O₃ au niveau de la surface en Europe. Cette influence est principalement associée

au transport de l'O₃ plutôt que de ses précurseurs, avec une contribution comparable du transport direct dans la couche limite et du transport dans la troposphère libre (la pollution atteint alors la surface suite à un mouvement subsidant au-dessus de l'Europe).

De fortes colonnes d'ozone sont également observée au-dessus de l'Arctique. Ces colonnes seront discutées dans le paragraphe dédié à l'étude de l'Europe car un phénomène similaire peut-être observé à l'extrême nord de cette région.

Amérique centrale et Amérique du Sud : Des concentrations importantes de NO₂ sont observées par GOME au-dessus de l'Amérique centrale (très net maximum pour *Richter et Burrows* [2002] et fortes valeurs pour *Martin et al.* [2002]), très clairement liées aux feux, mais certainement également à la combustion de carburants fossiles et de biocarburants. Les colonnes relativement élevées observées au-dessus du centre et du sud-ouest de la région peuvent être attribuées à des émissions technologiques (transports et biocarburants en particulier, au niveau des grandes agglomérations brésiliennes par exemple) et à des émissions par les sols. Les éclairs sont également nombreux dans le nord de l'Amérique du Sud mais leur influence est mal détectée par GOME.

De fortes colonnes de CO sont mesurées par IMG sur toute la partie nord de la région et peuvent être associées aux feux et à l'utilisation de combustibles fossiles et de biocarburants mais aussi aux émissions biogéniques par la végétation au-dessus de la forêt amazonienne. Le transport peut également jouer un rôle important dans la formation de ce panache très étendu. Aux émissions (et à la production) locales s'ajoutent les émissions anthropiques provenant des régions plus peuplées d'Amérique centrale et des côtes brésiliennes, transportées par les vents de sud-est (alizés). Des masses d'air polluées provenant de l'est de l'Amérique du nord, de l'Europe et de l'Afrique centrale peuvent également être transportées jusque dans cette région par les alizés. Les vents sont cependant relativement faibles sur le continent et le transport associé devrait être lent.

Les colonnes d'O₃ IMG semblent plutôt suivre le comportement des colonnes de NO₂ et la production semble donc relever du régime "NO_x limité". Des valeurs relativement élevées sont observées au-dessus de l'Amérique centrale, du Brésil et du sud-ouest de l'Amérique du sud, s'étendant sur le Pacifique Est. Ce panache au-dessus du Pacifique peut s'expliquer par un transport vers le nord-ouest par les alizés.

Asie : De très fortes valeurs de NO₂, caractéristiques de la pollution urbaine et industrielle dans les pays industrialisés, sont restituées par les deux méthodes dans le nord-est de la région. Dans le sud, les concentrations sont également élevées, même si la méthode de *Richter et Burrows* [2002] donne des colonnes plus fortes, et sont plutôt caractéristiques des émissions par les feux de biomasse (même ordre de grandeur qu'en Afrique centrale). De très fortes colonnes de CO sont observées sur l'ensemble de la région, en particulier au-dessus du sud, de l'est et de l'océan Pacifique. Les principales sources sont la combustion fossile dans le nord-est et les feux dans le sud et l'est. La combustion de biocarburants et la végétation devraient également constituer des sources importantes dans le sud.

Les processus dynamiques entraînent un transport rapide vers le Pacifique dans la troposphère libre (avec deux trajectoires possibles vers le continent américain) et un transport vers l'ouest dans la basse troposphère avec les alizés. La pollution asiatique pourra donc être transportée à travers le Pacifique et la pollution du sud-est asiatique pourra être entraînée vers l'océan Indien, le Moyen-Orient et l'Afrique du Nord. Le transport de

pollution par les vents d'ouest depuis l'Afrique, l'Europe et l'Amérique du Nord pourrait d'autre part avoir un impact sur les observations en Asie.

Les quantités d'O₃ sont importantes sur toute la région et sur le Pacifique, mettant en évidence la production importante et le transport rapide. Il est, dans cette région, très difficile de distinguer l'origine des précurseurs et donc de l'O₃. Plusieurs études ont couplé l'analyse de modèles et d'observations *in situ* afin d'estimer la contribution des différentes sources et de quantifier le transport d'ozone depuis cette région. *Bey et al.* [2001] ont ainsi montré que le transport vers l'océan Pacifique dans la troposphère libre constitue le principal processus d'exportation de polluants asiatiques et ont mis en évidence l'importance des soulèvement de masses d'air au-dessus de la Chine. D'après l'étude de *Wild et al.* [2001], l'est de l'Asie est la région qui a le plus fort impact sur l'ozone troposphérique, principalement du fait du transport vertical très efficace. Les travaux de *Liu et al.* [2002] ont mis en évidence une influence comparable des feux de biomasse (aux latitudes inférieures à 32°N), des combustibles fossiles et des éclairs sur l'O₃ observé en Asie. Ils ont également montré l'influence du transport depuis la stratosphère, qui peut s'étendre vers de plus basses latitudes par l'ondulation du jet subtropical, ainsi que l'importance de la contribution de la pollution européenne, africaine et nord-américaine.

Europe : Le NO₂ observé est extrêmement élevé au nord de l'Europe de l'Ouest, caractérisant une très forte pollution associée principalement aux émissions technologiques. Les études de *Pétron* [2003] et *Martin et al.* [2003] montrent que les émissions biogéniques sont relativement faibles dans cette région en avril (plus importantes en été). Les colonnes de CO sont également fortes sur toute la région mais les valeurs maximales sont atteintes au nord-est. Ceci pourrait être lié à la moins bonne sensibilité de l'instrument IMG aux premières couches de la troposphère. Les maxima ne sont donc détectés qu'après le transport vertical de la pollution vers la troposphère libre. Ce décalage pourrait également être dû aux émissions moins importantes à l'ouest, comme le montre la distribution des émissions anthropiques de CO dans l'inventaire EDGAR-3.2 de la figure 7.4, mettant en évidence les différentes politiques énergétiques (utilisation d'énergie nucléaire en France par exemple).

L'O₃ observé ne semble pas très fort par rapport aux précurseurs présents dans la région. La validation a mis en évidence les problèmes de notre méthode pour estimer l'O₃ troposphérique aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord, en Europe en particulier, lors de fortes variabilités dans la basse troposphère (*cf.* partie 6.2.2). Il pourrait également y avoir des quantités de NO_x trop importantes par rapport au CO pour permettre une production nette d'O₃.

Un panache de fortes colonnes troposphériques d'ozone est en revanche observé au-dessus de l'Europe du Nord. Ces fortes valeurs peuvent être rapprochées du phénomène de "brume Arctique" lié à l'accumulation de pollution dans les régions polaires durant l'hiver et à la forte production d'ozone au printemps lors du retour du soleil et de la photochimie. De nombreux travaux ont porté sur l'étude de la présence d'une pollution intense dans les régions polaires en hiver et au printemps. *Klonecki et al.* [2003] ont montré que, durant l'hiver, la pollution transportée vers l'Arctique provient principalement d'Europe et de Sibérie, la pollution nord-américaine restant plus au sud, souvent au sud du cercle polaire.

7.4 Conclusions

L'étude des distributions des principaux précurseurs de l'ozone et de leurs sources permet donc de vérifier la bonne cohérence des distributions d'ozone troposphérique inversées. Bien que cette analyse soit handicapée par la faible couverture spatio-temporelle des mesures IMG, un premier bilan simplifié des processus régissant la présence de l'ozone dans la troposphère a pu être réalisé.

En avril 1997, l'ozone semble être majoritairement associé aux émissions technologiques aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord (nord-est et sud-ouest de l'Amérique du Nord, nord-est de l'Asie, Europe) et aux feux de biomasse (en Afrique centrale et en Asie du Sud-Est), aux éclairs (principalement au-dessus de continents dans les tropiques) et à l'utilisation de biocarburants dans les tropiques et les subtropiques. L'importance du transport est d'autre part bien visible sur les distributions de polluants, avec de panaches intenses de CO et d'O₃ au-dessus de l'Atlantique et du Pacifique.

Dans certaines régions cependant, les quantités observées sont plus difficiles à interpréter. C'est en particulier le cas en Afrique du Nord, dans le nord de l'Amérique du Sud, au Moyen-Orient et en Europe. Dans ces régions, une étude plus détaillée est nécessaire afin d'évaluer les hypothèses avancées lors de cette première étude et de déterminer l'influence relative des différentes sources de précurseurs et du transport depuis d'autres régions.

L'analyse est ici purement descriptive et se base sur la considération en parallèle des distributions des différents constituants, des observations disponibles sur leurs sources (feux, végétation, éclairs), des inventaires des émissions de polluants et de la population mondiale, ainsi que des processus de transport des masses d'air à partir des champs analysés ECMWF. Pour une compréhension plus précise des processus, une analyse couplée de ces différentes informations est nécessaire. Plusieurs études sont pour cela envisagées, comprenant le calcul de trajectoires/rétro-trajectoires (ou rétro-panaches afin de suivre le transport des traceurs en fonction de l'âge des masses d'air), l'utilisation d'un modèle atmosphérique de chimie-transport (calculs de flux de polluants, études de sensibilité) et le couplage de ce modèle avec les observations disponibles en utilisant des méthodes de modélisation inverse (contrainte des sources) et d'assimilation de données (contrainte de l'état de l'atmosphère).

Les travaux qui seront réalisés dans le futur pour l'analyse de l'O₃ seront détaillés dans la conclusion générale de cette thèse.

Chapitre 8

Observations de la composition de l'atmosphère à partir d'un satellite géostationnaire

La majorité des missions spatiales dédiées à l'étude de la chimie atmosphérique, lancées ou prévues pour les années à venir, volent sur des orbites terrestres basses, héliosynchrones, avec des intervalles de temps entre deux passages successifs au-dessus du même point de typiquement trois jours (quatre jours pour IMG/ADEOS, une demi-journée seulement pour IASI/METOP grâce au balayage) et un passage au-dessus d'un point donné à un moment fixe de la journée (10h30 pour IMG/ADEOS, 9h30 pour IASI/METOP — orbites descendantes). Il n'y a actuellement aucun instrument dédié à la chimie atmosphérique sur une orbite géostationnaire. Des mesures de ce type ont cependant un potentiel énorme dans ce domaine car elles permettent de fournir des données sur une échelle synoptique et représentatives du cycle diurne, en particulier pour des applications opérationnelles telles que la surveillance et la prévision de la qualité de l'air et du rayonnement UV à la surface, le contrôle des émissions de polluants atmosphériques, la détection et le suivi de panaches de pollution imprévisibles (éruptions volcaniques, feux de forêts, *etc.*)

Depuis plus de vingt ans, les satellites géostationnaires Meteosat, développés par l'ASE et exploités par EUMETSAT, contribuent de manière active à la météorologie opérationnelle. Après le lancement en 2002 de Meteosat seconde génération (MSG — amélioration du satellite et de la distribution des données par rapport à Meteosat), des applications aux études de la chimie atmosphérique sont actuellement envisagées pour la nouvelle génération de satellites géostationnaires (pour 2015-2025). Un processus de consultation des utilisateurs ("The user consultation process") a été lancé par EUMETSAT afin de définir le Post-MSG.

Une première contribution, l'étude "Geostationary satellite observations for monitoring atmospheric composition and chemistry applications" [Lelieveld, 2003], a permis de définir les domaines d'application des mesures géostationnaires ainsi que le type de mesures nécessaires. Ils précisent en particulier qu'une combinaison de mesures dans l'UV-visible et dans l'IR serait optimale.

Suite à cette étude, l'étude "Capabilities of infrared sounder observations for monitoring atmospheric composition and chemistry applications" [Clerboux *et al.*, 2003b] a analysé les capacités d'un sondeur IR de type IMG ou IASI à satisfaire les exigences définies par Lelieveld [2003] pour l'observation de la composition de l'atmosphère en se

basant sur les spécifications fournies par EUMETSAT pour un instrument Post-MSG. Les objectifs de cette étude étaient :

- identifier les régions d’absorption pour chaque produit en utilisant des bases de données spectroscopiques standard ;
- réaliser des simulations de transfert radiatif en utilisant des situations atmosphériques représentatives (e.g. forts/faibles niveaux de pollution) ;
- étudier l’impact du bruit et de la résolution verticale sur la précision des produits inversés ;
- explorer la possibilité d’inverser des profils verticaux pour des espèces sélectionnées et quantifier la résolution verticale qui pourra être atteinte.

Le rapport complet est disponible sur le site internet de EUMETSAT à l’adresse <http://www.eumetsat.de>.

Après une rapide description du cadre de ces travaux (spécifications instrumentales) et des principaux résultats obtenus pour les trois premiers objectifs, je détaille dans ce chapitre ma contribution à cette étude : le diagnostic du contenu en information des spectres IR et l’analyse de la dépendance de cette information aux spécifications instrumentales.

8.1 Spécifications instrumentales

Les spécifications instrumentales fournies par EUMETSAT pour l’instrument Post-MSG (extraites du document “Post-MSG Mission MRD Sounder Discussion”, juin 2003) sont indiquées. Elles ont été définies afin de remplir en priorité les exigences pour la prévision météorologique (Numerical Weather Prediction, NWP) régionale et globale.

8.1.1 Résolution spatiale et temporelle

Afin d’augmenter la capacité des services de météorologie nationale à initialiser les modèles de prévision avec des champs de température, d’humidité et de vent réalistes, des mesures ayant une grande résolution verticale et spatiale et un bon échantillonnage temporel sont nécessaires.

Le domaine de balayage de l’instrument pourra être sélectionné et pourra s’étendre des méso-échelles (1000×1000 km) au-dessus des domaines des modèles régionaux à un disque complet pour les applications globales.

- Pour les modèles globaux, un échantillonnage temporel de 60 minutes au-dessus du disque complet est nécessaire (valeur SEUIL), mais certaines applications peuvent nécessiter un échantillonnage de 15 minutes (valeur CIBLE).
- Pour les modèles régionaux, un échantillonnage temporel de 10 minutes au-dessus d’un domaine de la taille de l’Europe est nécessaire (SEUIL ; CIBLE : 5 minutes).
- Pour la prévision à très court terme (“nowcasting”), un échantillonnage temporel de 2 minutes sur un domaine de 1000×1000 km (SEUIL ; CIBLE : 1 minutes) est nécessaire.

Pour être en accord avec la résolution des modèles de prévision, l’instrument doit fournir des spectres pour une inversion de la température et de l’humidité relative avec une résolution spatiale de $\Delta X = 10$ km (SEUIL ; CIBLE : $\Delta X = 2$ km). Cette résolution est nécessaire afin de définir les gradients horizontaux de température et d’humidité. La

résolution spatiale CIBLE est préférée car augmenter la résolution spatiale augmente fortement les chances d'obtenir des mesures en ciel clair et améliore les capacités de l'instrument à effectuer des mesures autour des points nuageux.

8.1.2 Résolution spectrale et bruit

L'instrument Post-MSG devrait couvrir de manière continue un domaine spectral allant de 700 cm^{-1} à 2500 cm^{-1} (c'est-à-dire $4.0\text{ }\mu\text{m}$ à $14.3\text{ }\mu\text{m}$). Une performance réduite peut-être acceptée pour le domaine de 1250 cm^{-1} à 1587 cm^{-1} (i.e. $6.3\text{ }\mu\text{m}$ à $8.0\text{ }\mu\text{m}$). Le domaine spectral devrait être étendu jusqu'à 667 cm^{-1} ($14.99\text{ }\mu\text{m}$), la structure la plus opaque de la bande à $15\text{ }\mu\text{m}$ du CO_2 , mais le bruit n'est spécifié que jusqu'à 700 cm^{-1} . Les performances seront rapportées jusqu'à 667 cm^{-1} .

La résolution spectrale après apodisation est indiquée dans le tableau 8.1 en fonction du nombre d'onde.

Le bruit radiométrique est spécifié en terme de différence de température équivalente (noise equivalent temperature difference — NEDT) associée à une température de référence de 280 K.

Il est également indiqué dans le tableau 8.1. Les spécifications sont ici fournies pour des spectres calibrés, c'est-à-dire que le bruit associé aux coefficients de calibration est inclus.

TAB. 8.1 – *Résolution spectrale et bruit spécifiés en fonction du nombre d'onde ($T = \text{SEUIL}$, $G = \text{CIBLE}$).*

Bande	Domaine de fréquence cm^{-1}	Résolution spectrale cm^{-1}	NEDT @ 280 K 1σ
IRS-0	667-700	0.625 cm^{-1} (T ; G 0.5)	TBD
IRS-1	700-770	0.625 cm^{-1} (T ; G 0.5)	0.2 (G : 0.1) TBC
IRS-2	770-1000	0.625 cm^{-1} (T ; G 0.5)	0.24 (G : 0.12) TBC
IRS-3	1000-1070	1.25 cm^{-1} (T ; G 0.5)	0.2 (G : 0.15) TBC
IRS-4	1070-1210	1.25 cm^{-1} (T ; G 0.5)	0.3 (G : 0.2) TBC
IRS-5	1210-1600	1.25 cm^{-1} (T ; G 0.5)	0.2 (G : 0.1) TBC
IRS-6	1600-2000	1.25 cm^{-1} (T ; G 0.5)	0.35 (G : 0.25) TBC
IRS-7	2000-2250	1.25 cm^{-1} (T ; G 0.5)	0.2 (G : 0.15) TBC
IRS-8	2250-2400	1.25 cm^{-1} (T ; G 0.5)	0.3 (G : 0.25) TBC
IRS-9	2400-2500	1.25 cm^{-1} (T ; G 0.5)	0.4 (G : 0.25) TBC

Un objectif secondaire de la mission est de répondre aux besoins dans les domaines de la chimie atmosphérique et de l'observation opérationnelle de la qualité de l'air. Il a pour cela été proposé d'ajouter un mode spécifique à la chimie, caractérisé par une résolution de 0.2 cm^{-1} ou meilleure. Il faut cependant souligner qu'augmenter la résolution spectrale peut engendrer une diminution de l'échantillonnage temporel et/ou du domaine couvert.

8.2 Observations géostationnaires pour la chimie atmosphérique

8.2.1 Objectifs

Les observations requises pour les études de chimie atmosphérique, définies par l'étude de *Lelieveld* [2003] et par l'étude de *Golding et al.* [2003] ("Consolidated Table of Observational Requirements for Nowcasting and very short range forecasting in 2015-2020, excluding NWP"), sont indiquées dans le tableau 8.2.

Ce tableau précise pour chaque produit la question scientifique correspondante, ainsi que les caractéristiques prérequis en termes de précision et de résolution spatiale et temporelle. Les questions scientifiques sont spécifiées de la manière suivante :

A= Applications opérationnelles pour la chimie atmosphérique [*Lelieveld*, 2003] ;
 B= Transport : aviation (alertes, dommages), transports terrestres [*Golding et al.*, 2003] ;
 C= Vie : effets respiratoires (1), exposition aux UV (2) [*Golding et al.*, 2003] ;
 D= Observation des sources/puits, inversion de gaz traces [*Golding et al.*, 2003] ;
 E= Qualité de l'air / feux de végétation [*Golding et al.*, 2003] ;
 F= Destruction de l'O₃ stratosphérique [*Golding et al.*, 2003].

Pour chaque question, les variables intéressantes sont spécifiées, avec AOT pour l'épaisseur optique des aérosols, Aer Reff pour le rayon effectif des aérosols, SSA pour leur albédo de diffusion simple, PAN pour le nitrate de peroxyacétyle, COV pour les composés organiques volatiles. La résolution nécessaire pour qu'une observation puisse être réalisée (valeur seuil) est indiquée, avec entre parenthèses la résolution au-delà de laquelle aucune avancée ne peut être réalisée (valeur cible). Pour la résolution verticale, "T" représente la colonne totale atmosphérique, "t" la colonne troposphérique, "BL" la couche limite, "FT" la troposphère libre et "s" la stratosphère. Pour la résolution temporelle, l'indice "d" représente le jour et "n" la nuit. Des valeurs seuil et cible requises sont également spécifiées pour la précision des observations. Celle-ci peut être exprimée par une erreur quadratique (RMS en %) ou par un taux de succès pour la détection d'une variable (*e.g.* en unités AOT ou SSA). Enfin, les précision/résolution spatiale/verticale/temporelle qui fourniraient une avancée significative dans la capacité de prévision par rapport aux données actuellement disponibles sont indiquées.

8.2.2 Variabilités

Pour pouvoir être détectée depuis l'espace, une molécule doit d'une part avoir une signature spectrale dans le domaine spectral couvert par l'instrument (voir paragraphe suivant) et d'autre part être présente dans l'atmosphère dans une quantité suffisante. Cette dernière condition dépend des sources et des puits de chaque espèce et est sujette à d'importantes variations dues à la variabilité locale associée aux contributions naturelles et/ou anthropiques. Les rapports de mélanges et les durées de vie représentatifs d'une zone de pollution urbaine (moyennée sur le globe) pour les produits que l'on désire observer sont donnés dans le tableau 8.3. Les durées de vie dépendent de la saison et de la localisation considérées.

TAB. 8.2 – *Spécifications sur les observations nécessaires pour les applications en chimie opérationnelle.*

Question scientifique	Produit observé	Résolution horizontale en km	Résolution verticale en km	Résolution temporelle en h	Précision en %	Niveau d'innovation
Ozone						
A,C1	O ₃	10 (2)	t (2)	1 ^{d(n)} (.5)	10 (5)	5%/10km/tropo/1h
C2	O ₃ total	100 (10)	T	24 (1)	-	50km/6h
C2	O ₃ profil	50 (10)	2 (.5)	24 (1)	-	-
Pollution						
A,E	CO	10 (2)	t (2)	2 ^{d(n)} (.5)	10 (5)	10%/10km/tropo/1h
A,E	SO ₂	10 (2)	t (2)	1 ^{d(n)} (.5)	50 (20)	50%/10km/tropo/1h
A,E	H ₂ CO	10 (2)	t (2)	1 ^{d(n)} (.5)	50 (20)	50%/10km/tropo/1h
E	NO	10 (2)	t (2)	1 (.5)	-	-
A,E	NO ₂	10 (2)	t (2)	1 ^{d(n)} (.5)	50 (20)	50%/10km/tropo/1h
A,E	PAN	10 (2)	t (2)	1 ^{d(n)} (.5)	50 (20)	50%/10km/tropo/1h
E	COV	10 (1)	t (2)	3 (.25)	20 (10)	-
Rayon. UV						
A	UV-A	10 (2)	surface	1 ^{d(n)} (.05)	20 (5)	régional
C	UVA	50(2)	surface	3 (.5)	20 (5)	10%/10km/surf./1h
A	UV-B	10 (2)	surface	1 ^{d(n)} (.05)	20 (5)	régional
C	UVB	50(2)	surface	3 (.5)	20 (5)	10%/10km/surf./1h
C2	albédo UV	10 (1)	surface	>24	20 (10)	-
C2	absorbants UV (NO ₂ ,...)	10 (10)	T	24 (1)	-	-
Aérosols						
A,C1	AOT (D<1 μm)	5 (0.5)	t (BL+FT)	1 ^{d(n)} (0.25)	0.05(0.01)	.05/5km/T/1h
A,C1	AOT (D>1 μm)	5 (0.5)	t (BL+FT)	1 ^{d(n)} (0.25)	0.05	.05/5km/T/1h
A,C1	Aer Reff	5 (0.5)	T	1 ^{d(n)} (0.25)	30 (10)	30/5km/T/1h
A,C1	SSA	5 (0.5)	T	1 ^{d(n)} (0.25)	0.03	.03/5km/T/1h
B	conc. cendres volcaniques	50 (1)	t (.3)	6 (.25)	20 (5)	20%/20km/total/1h
B	loc. cendres volcaniques	250 (1)	t (.3)	6 (.25)	20 (5)	20%/20km/total/1h
B	comp. cendres volcaniques	100 (1)	t (.3)	1 (.25)	70 (85)	70%/20km/total/1h
B	loc. tempêtes sable/poussières	50 (1)	t	1 (.25)	50 (85)	70%/40km/total/1h
B	localisation volcans	1 (.1)	surface	6 (1)	50 (85)	50%/50km/surf./1h
C2	total aérosols	50 (10)	T	24 (1)	25 (10)	25/20km/24h
Météo.						
D	T	10 (2)	2 (1)	1 (.25)	2K (1K)	2K/10km/2km/1h
A, D	H ₂ O	5 (0.5)	t (BL+FT)	1 ^{d(n)} (0.25)	5 (1)	5%/10km/2km/1h
C2	total eau nuages	50 (10)	T	24 (1)	-	-
Climat						
A,D	CO ₂	50 (10)	t (.5)	6 ^{d(n)} (1)	2 (1)	5%/50km/total/6h
A,D	CH ₄	50 (10)	t (1)	6 ^{d(n)} (1)	5 (1)	5%/50km/total/6h
F	CFC11	50 (10)	S	24 (1)	-	-
F	CFC12	50 (10)	S	24 (1)	-	-

8.2.3 Espèces détectées par un sondeur IR

Les principales signatures spectrales comprises dans les spectres atmosphériques mesurés depuis l'espace dans le domaine de l'IR thermique ont été présentées dans le paragraphe 2.1.6 de cette thèse. Toutes les molécules ciblées par le tableau 8.2 ont une signature d'absorption dans le domaine nominal prédéfini (700 cm⁻¹ - 2500 cm⁻¹) sauf H₂CO dont la signature se situe entre 2750 cm⁻¹ et 3000 cm⁻¹. Les domaines spectraux d'absorption sont précisés pour chaque molécule dans *Clerboux et al.* [2003b].

L'inversion des colonnes atmosphériques totales a permis de tester la capacité du sondeur IR à observer ces molécules. Une inversion en utilisant un code d'ajustement des moindres carrés a pour cela été utilisée. L'étude a montré que la précision exigée pour les études de chimie atmosphérique est atteinte pour toutes les molécules identifiées comme fortement absorbantes dans l'IR (forte absorption dans l'IR et/ou forts rapports

TAB. 8.3 – *Rapports de mélange dans la couche limite et durées de vie atmosphériques des gaz traces observés. Les durées de vie représentatives de conditions urbaines pour les gaz réactifs (O_3 , CO , NO_2 , H_2CO et PAN) ont été calculés en utilisant le modèle régional CHIMERE [Derognat et al., 2003] (avec la permission de Claude Derognat, Service d'Aéronomie).*

Donnée	Rapport de mélange	Durée de vie urbaine/continentale
O_3	50 - 150 ppbv	1 jour/6 jours
CO	50 - 750 ppbv	1 jour/1-2 mois
SO_2	10 pptv - 1 ppbv	1 jour
H_2CO	0.1 - 10 ppbv	3 heures/10 heures
NO_2	1 ppbv - 100 ppbv	3 heures/1.5 jours
PAN	100 pptv - 10 ppbv	3 heures/3 jours
H_2O	1000 ppmv	-
CO_2	3.65 ppmv	100 ans
CH_4	1.7 ppmv	9 ans

de mélange atmosphériques), c'est-à-dire H_2O , CO_2 , O_3 , N_2O , CH_4 et CO , même si les incertitudes obtenues sont certainement sous-estimées car elles ont été évaluées sur des spectres simulés, pour lesquels tous les paramètres sont connus. La performance de l'inversion semble d'autre part plus sensible au bruit qu'à la résolution spectrale, bien que cette dernière ait un fort impact sur les inversions de CH_4 .

Les molécules identifiées comme faiblement absorbantes dans l'IR (faible absorption dans l'IR et/ou faibles rapports de mélange atmosphériques) sont plus difficilement détectées. Les bandes d'absorption de NO_2 , SO_2 , H_2CO et PAN sont trop faibles pour être détectées dans des conditions atmosphériques normales avec les caractéristiques définies pour Post-MSG. Leur signature peut cependant se distinguer du bruit dans des conditions polluées à fortement polluées (par exemple SO_2 en cas d'éruptions volcaniques). Une haute résolution et un bruit faible sont toutefois nécessaires afin de pouvoir observer ces espèces.

8.3 Contenu en information

Un diagnostic du contenu en information a été réalisé d'après *Rodgers [2000]* en utilisant la théorie exposée dans le chapitre 4 de cette thèse. Trois espèces seulement ont été considérées adaptées à une inversion à une meilleure résolution verticale que la colonne totale : l' O_3 , le CO et le CH_4 . L'impact de la résolution verticale et du bruit instrumental sur la quantité d'information indépendante qui peut être observée sur la verticale a été estimée.

Pour cela, quatre résolutions spectrales ont été testées, tout d'abord avec un bruit NEDT constant égal à 0.2 K, puis avec un bruit variant entre 0.05 et 0.5 K :

- la résolution seuil égale à 1.25 cm^{-1} ;
- la résolution cible égale à 0.5 cm^{-1} ;
- deux résolutions additionnelles : 0.75 cm^{-1} ("performance réduite") et 0.2 cm^{-1} ("performance améliorée").

Les profils atmosphériques tracés sur la figure 8.1, correspondant à une région pol-

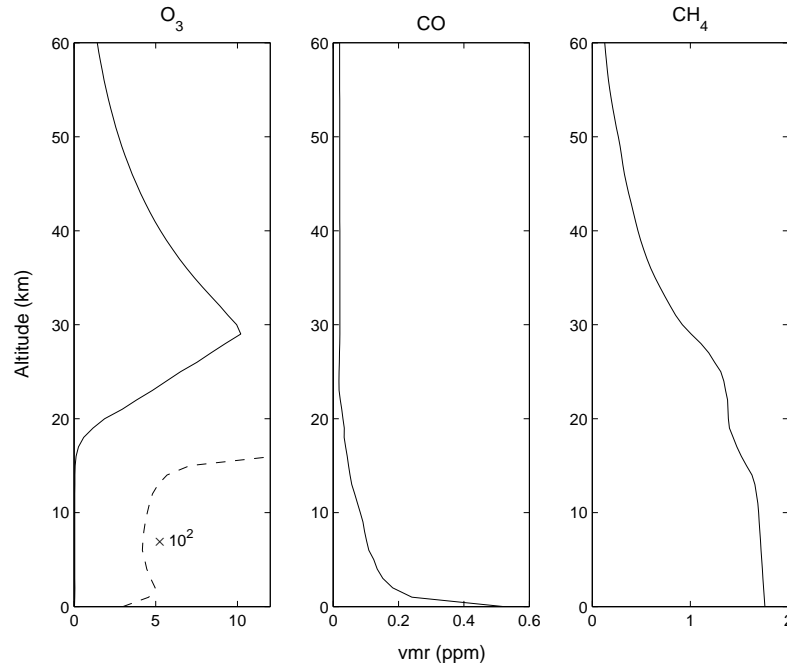


FIG. 8.1 – Profils atmosphériques d' O_3 , de CO et de CH_4 correspondants à des conditions polluées (Amérique du Nord).

luée, ont été utilisés pour les simulations de transfert radiatif (réalisée à l'aide du code de transfert radiatif LBLRTM). Pour chaque molécule, les études sont réalisées sur les intervalles spectraux qui ont été sélectionnés pour IASI, indiquées dans le tableau 4.1 du chapitre 4 de cette thèse pour l' O_3 et dans le tableau 8.4 pour le CO et le CH_4 . Bien que les canaux optimaux (signature spectrale intense et contribution minimale des gaz traces interférents) dépendent de la résolution spectrale considérée, une sélection spécifique à chaque résolution n'a pas été réalisée. Une étude plus précise devra être réalisée en effectuant une sélection précise des canaux pour chaque résolution spectrale.

L'évaluation du contenu vertical en information requiert le calcul de plusieurs matrices : les Jacobiens \mathbf{K} , la covariance *a priori* \mathbf{S}_a associée au profil vertical *a priori* \mathbf{x}_a de la molécule étudiée et la covariance de l'erreur sur la mesure \mathbf{S}_ϵ .

Comme pour l'étude du chapitre 4, \mathbf{K} est calculée en utilisant une méthode de perturbation.

Le bruit radiométrique ϵ a été considéré comme la seule erreur sur la mesure. Un bruit non corrélé a été simulé en multipliant un niveau de bruit donné à un nombre aléatoire (de déviation standard égale à 1), si bien que \mathbf{S}_ϵ est une matrice diagonale dont les éléments diagonaux représentent la variance de ϵ .

La matrice de covariance \mathbf{S}_a est plus difficile à simuler. \mathbf{S}_a correspond à la variabilité autorisée autour de l'état *a priori* \mathbf{x}_a considéré pour l'inversion. Le nombre de degrés de liberté du problème dépend fortement de cette matrice. La figure 8.2 montre les matrices \mathbf{S}_a estimées pour l' O_3 , le CO et le CH_4 en utilisant des profils atmosphériques réalistes (sorties du modèle de chimie-transport MOZART [Hauglustaine et al., 1998] raccordées aux climatologies UGAMP [Li and Shine, 1995] au-dessus de la tropopause). Pour le CO , seules les corrélations jusqu'à 30 km d'altitude sont représentées sur la figure afin de ne

TAB. 8.4 – Canaux sélectionnés pour l'inversion du CO et du CH₄ à partir des mesures IASI.

Molécule		Intervalle spectral (cm ⁻¹)	Canaux IASI	Nombre de canaux
CO	1	2111.25 - 2112.00	5866 - 5869	4
	2	2150.25 - 2150.75	6022 - 6024	3
	3	2154.00 - 2154.50	6037 - 6039	3
	4	2157.75 - 2158.75	6052 - 6056	5
	5	2165.00 - 2166.00	6081 - 6085	5
	6	2168.75 - 2169.50	6096 - 6099	4
	7	2172.50 - 2173.25	6111 - 6114	4
	8	2176.25 - 2176.50	6126 - 6127	2
	Total			30
CH ₄	1	1230.00 - 1230.25	2341 - 2342	2
	2	1235.75 - 1236.00	2364 - 2365	2
	3	1241.00	2385	1
	4	1245.75	2404	1
	5	1246.50	2407	1
	6	1247.50 - 1248.00	2411 - 2413	3
	7	1249.75 - 1250.00	2420 - 2421	2
	8	1253.25 - 1253.75	2434 - 2436	3
	9	1263.25 - 1263.50	2474 - 2475	2
	10	1275.00 - 1275.25	2521 - 2522	2
	11	1282.75 - 1283.50	2552 - 2555	4
	12	1302.75 - 1306.50	2632 - 2647	16
	13	1327.00 - 1327.50	2729 - 2731	3
	14	1332.00 - 1332.75	2749 - 2752	4
	15	1341.75 - 1342.00	2788 - 2789	2
	16	1342.75 - 1343.00	2792 - 2793	2
	17	1346.50 - 1347.00	2807 - 2809	3
	Total			53

montrer que les variabilités dans la basses atmosphère. En effet, pour cette molécule, la variabilité la plus importante est localisée dans la haute atmosphère. Pour les trois molécules, la variance a un niveau donné et les corrélations entre les niveaux dépendent fortement de l'altitude. Afin de simplifier l'étude, nous avons choisi de considérer une variance constante, caractéristique de la troposphère puisque c'est à cette région que nous nous intéressons en priorité ici, avec une matrice de covariance de la forme suivante (corrélation exponentielle suivant une loi d'échelle) :

$$S_a^{ij} = \sigma_a(i)\sigma_a(j) \exp\left(\frac{-|z(i) - z(j)|}{h}\right) \quad (8.1)$$

où S_a^{ij} représente la covariance entre les niveaux i et j d'altitude $z(i)$ et $z(j)$, pour lesquels la variance des rapports de mélange de gaz trace est égale à $\sigma_a(i)$ et $\sigma_a(j)$. h représente la longueur de corrélation entre les niveaux, c'est-à-dire la distance à laquelle la corrélation a diminué de $\exp(-1)$. Les matrices correspondantes pour O₃, CO et CH₄ sont représentées sur la figure 8.3. Pour l'O₃, cette approximation peut conduire à une sous-estimation de l'information due aux fortes concentrations stratosphériques.

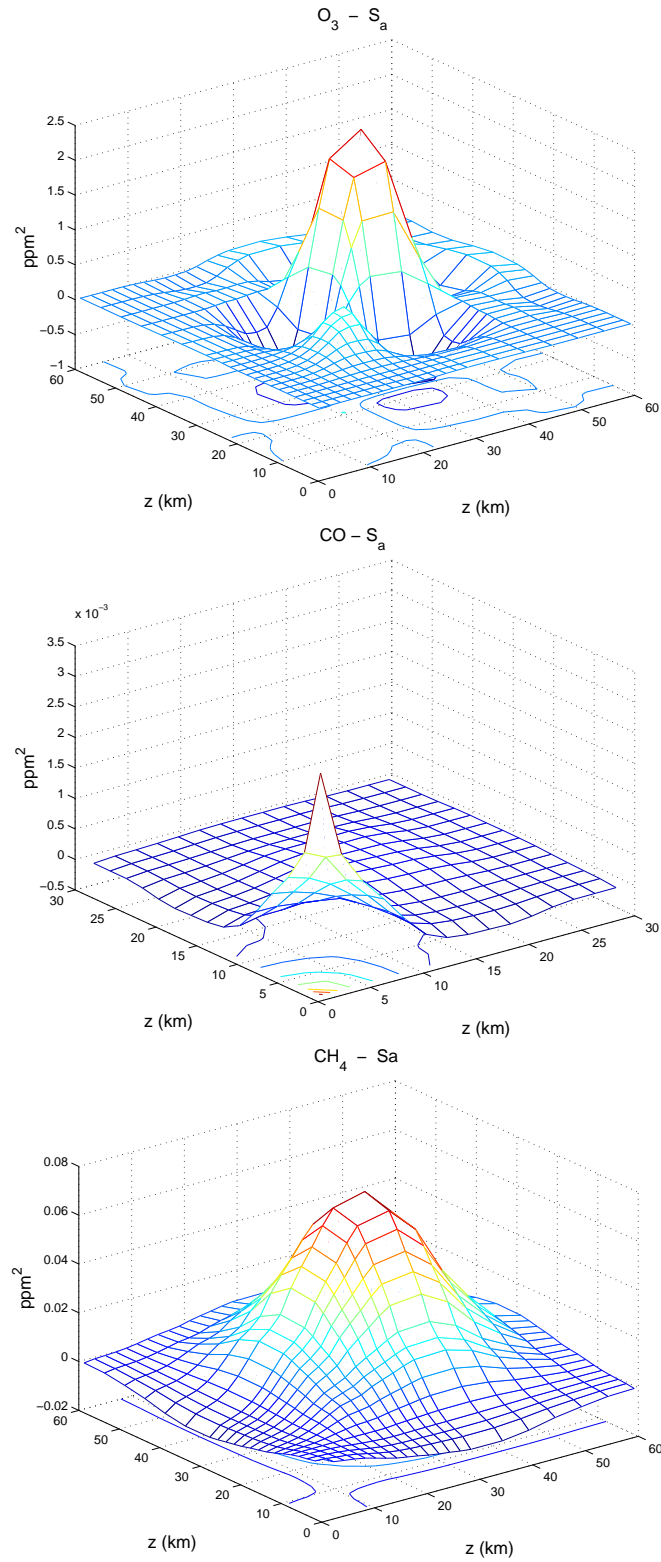


FIG. 8.2 – Matrices de covariance a priori calculées à partir des sorties d'un modèle troposphérique connectées à des climatologies.

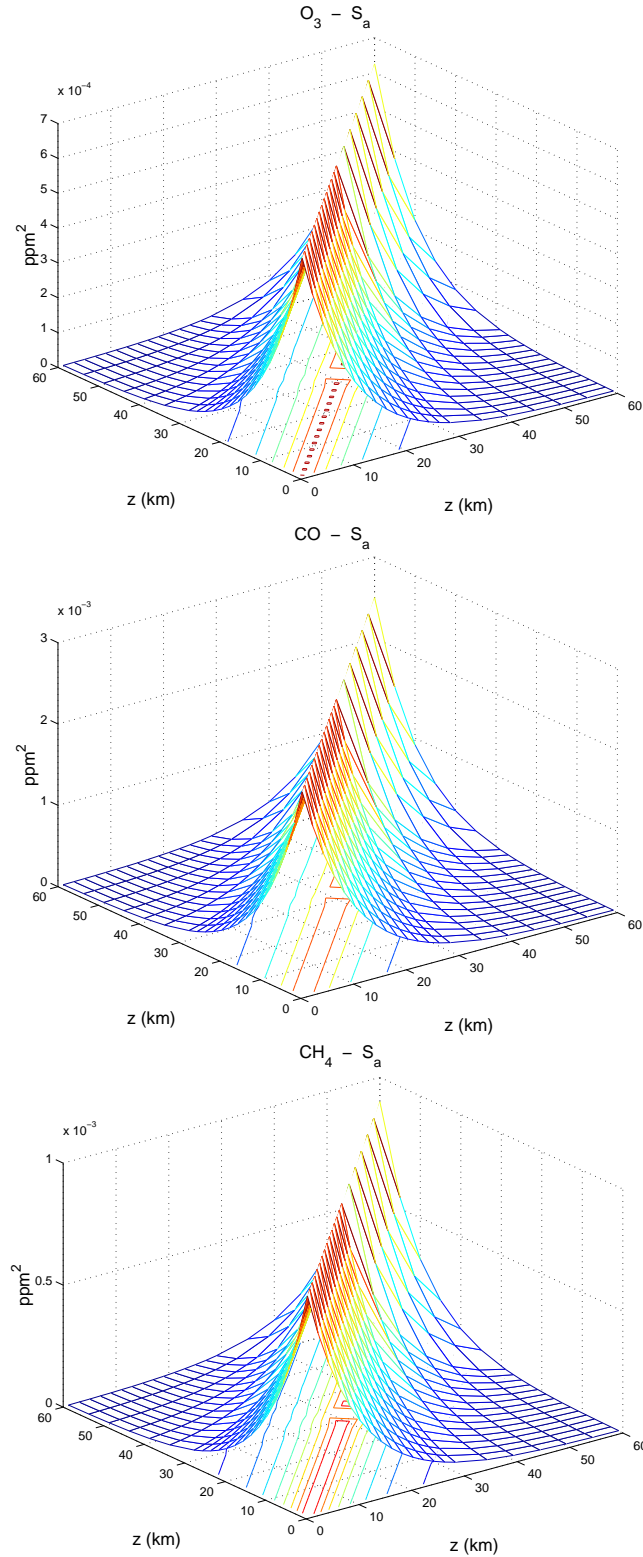


FIG. 8.3 – Matrices de covariance a priori calculées en utilisant une variance constante caractéristique de la troposphère (éléments diagonaux) et une corrélation exponentielle entre les niveaux (équation 8.1). La variance est fixée à 0.025 ppm pour l' O_3 , à 0.05 ppm pour le CO et à 0.03 ppm pour le CH_4 , et la longueur de corrélation à 10 km.

8.3.1 Sensibilité de l'instrument

Les Jacobiens \mathbf{K} caractérisant la sensibilité des mesures à l' O_3 , le CO et le CH_4 pour la résolution seuil (1.25 cm^{-1}) sont représentés sur la figure 8.4. Comme nous avons pu le

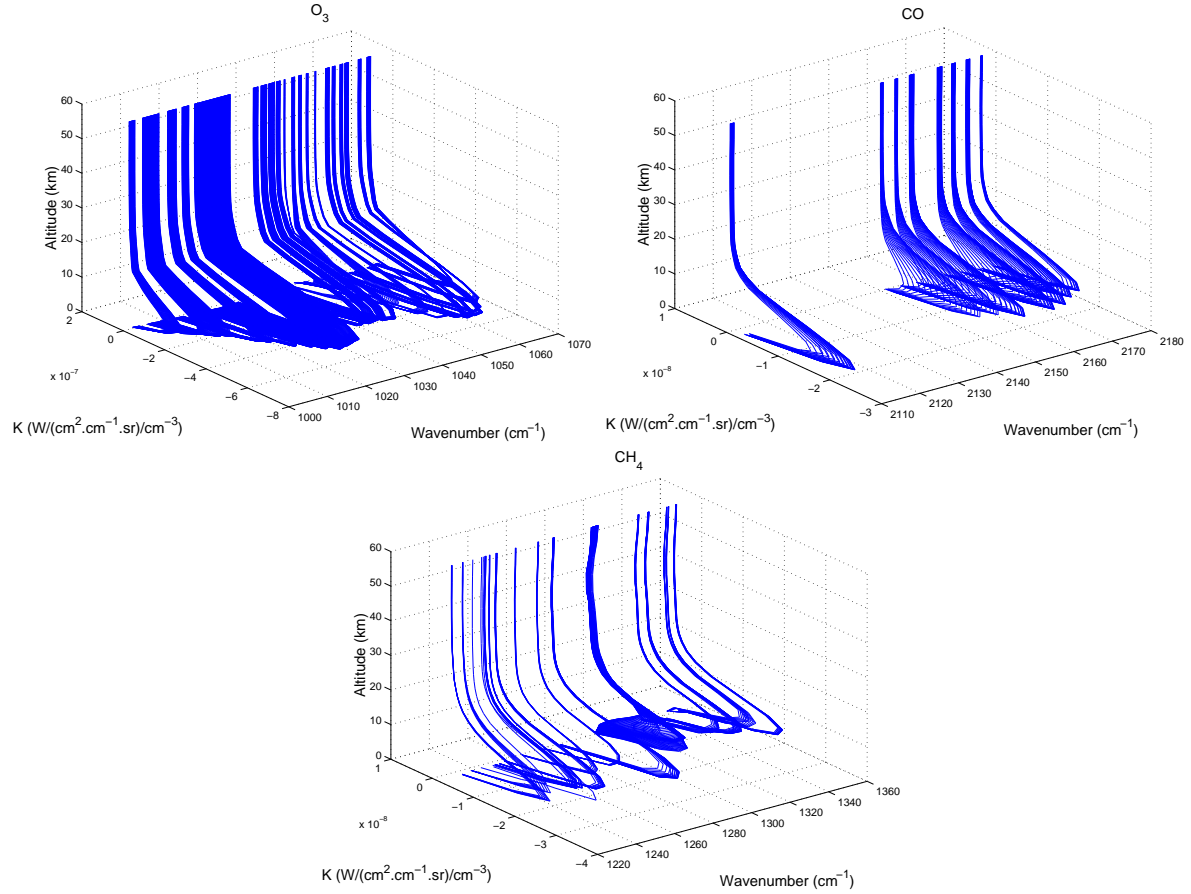


FIG. 8.4 – Matrices des Jacobiens \mathbf{K} caractérisant la sensibilité des mesures à l' O_3 , le CO et le CH_4 pour la résolution seuil (1.25 cm^{-1}).

voir pour IASI (chapitre 4), l'amplitude des Jacobiens dépend fortement de l'intensité de l'absorption et de l'émission et atteint un maximum dans la troposphère libre, entre 6 et 10 km. La sensibilité diminue rapidement au-dessous de 2 km. Pour l' O_3 , il y a plus d'information au-dessus de 25 km que pour les autres molécules dû aux fortes concentrations dans la stratosphère.

Le rang de \mathbf{K} donne une première estimation des informations indépendantes qui peuvent être observées par l'instrument dans des conditions idéalisées (sans erreur de mesure). Une étude de ce type a été réalisée dans le chapitre 4 de cette thèse pour IASI, nous n'allons pas redétailler les résultats, similaires ici même si les différentes résolutions spectrales impliquent des sensibilités différentes aux principaux modes de variation.

Cette première étude confirme que les mesures IR au nadir comprennent une information sur les principaux gaz traces qui dépend de l'altitude, avec un maximum de sensibilité dans la troposphère libre.

8.3.2 Quantité d'information indépendante

L'erreur sur la mesure (bruit radiométrique seulement ici) et la variabilité du constituant étudié sont prises en compte en considérant la matrice \mathbf{K} normalisée $\tilde{\mathbf{K}}$. La SVD de cette matrice permet de mettre en évidence ses principales structures et de calculer la quantité d'informations indépendantes contenu dans les spectres. Le nombre d'informations indépendantes correspond au nombre de valeurs singulières λ_i de $\tilde{\mathbf{K}}$ qui sont supérieures ou proches de 1. Le nombre de degrés de liberté peut être déduit grâce à l'équation

$$d_s = \sum_{i=1}^m \lambda_i^2 / (1 + \lambda_i^2).$$

La SVD de $\tilde{\mathbf{K}}$ pour l'O₃ est représentée sur la figure 8.5. À la résolution seuil, les trois premiers modes ont $\lambda_i \gtrsim 1$, ce qui implique que trois informations indépendantes environ pourraient être déduites des mesures. Le premier mode correspond à une variabilité dans la troposphère libre, le deuxième à une variabilité dans la basse troposphère et dans la basse stratosphère et le troisième mode à une variabilité dans la troposphère libre et dans la stratosphère. Le nombre de degrés de liberté déduit est égal à 2.46. Améliorer la résolution spectrale augmente la sensibilité aux deuxième et troisième modes. À la résolution 0.2 cm⁻¹, le nombre de degrés de liberté augmente de 0.4 point et atteint 2.83.

La SVD de $\tilde{\mathbf{K}}$ pour le CO est représentée sur la figure 8.6. À la résolution seuil, le premier mode correspond à une valeur singulière supérieure à 1 et le deuxième à une valeur singulière proche de 1. Comme pour l'O₃, le premier mode correspond à une variabilité dans la troposphère libre et le deuxième à une variabilité dans la basse troposphère et dans la basse stratosphère. Le nombre de degrés de liberté est estimé à 1.38. À la résolution améliorée, la sensibilité aux deux premiers modes augmente de manière significative et le nombre de degrés de liberté calculé atteint 2.24. L'impact de la résolution spectrale est donc plus important pour le CO que pour l'O₃.

La SVD de $\tilde{\mathbf{K}}$ pour le CH₄ est représentée sur la figure 8.7. Elle est relativement proche de la SVD pour le CO. À la résolution seuil, seul le premier mode a $\lambda_i > 1$, mais le deuxième mode est tout de même important. Le nombre de degrés de liberté est estimé à 1.2. À la résolution améliorée, la sensibilité aux deux premiers modes augmente légèrement et le nombre de degrés de liberté est estimé à 1.35. Comme pour l'O₃, l'impact de la résolution spectrale semble être relativement faible.

8.3.3 Impact du niveau de bruit

L'impact du bruit sur le nombre d'informations indépendantes sur la verticale qui peuvent être extraites des observations a été étudié en faisant varier le niveau de bruit entre 0.05 et 0.5 K. Pour chacune de ces valeurs, un bruit radiométrique ε non corrélé a été simulé, comme précédemment, en multipliant le niveau de bruit (en termes de luminances) à un nombre aléatoire (de déviation standard égale à 1) afin de tenir compte du caractère aléatoire du bruit. Les résultats obtenus sont présentés sur la figures 8.8 pour les quatre résolutions spectrales étudiées.

Les oscillations observées sont liées à la méthode utilisée pour simuler le bruit ε . La considération d'un bruit constant permet d'éliminer ces variations mais est moins réaliste.

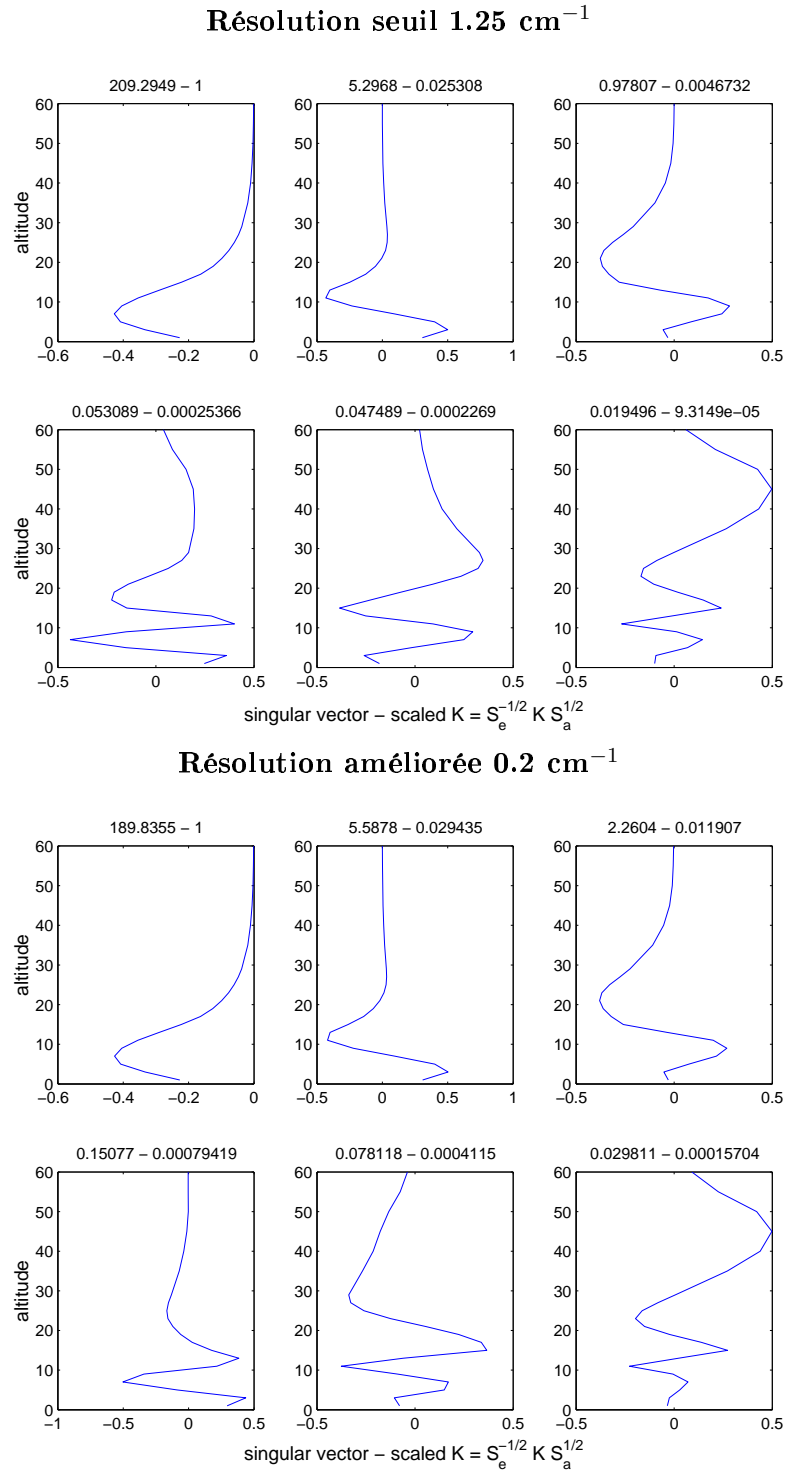


FIG. 8.5 – Six premiers vecteurs singuliers associés à la matrice $\tilde{\mathbf{K}}$ calculée pour l' l'O_3 . Les valeurs singulières correspondantes sont indiquées au-dessus des figures ainsi que leur importance relative par rapport au premier mode.

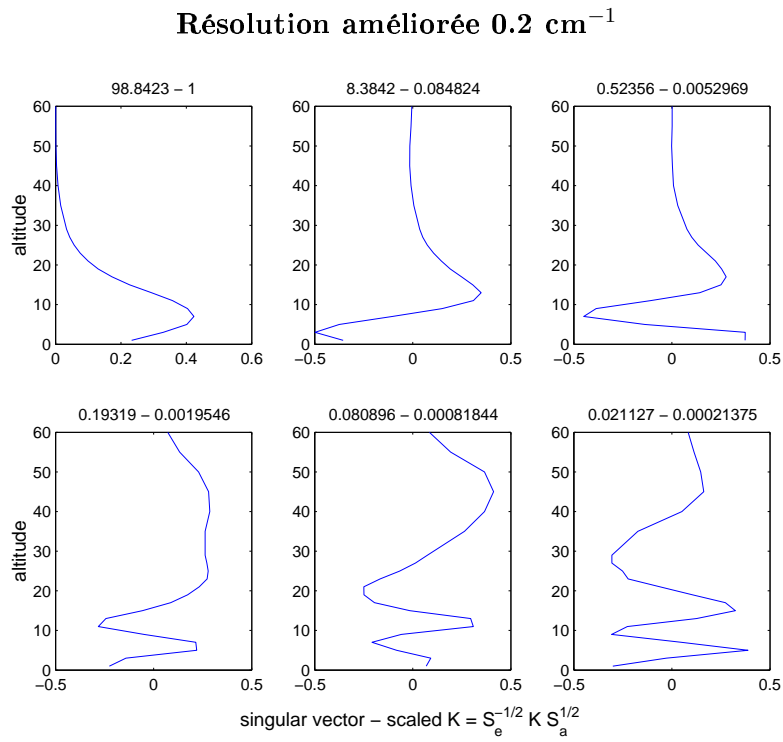
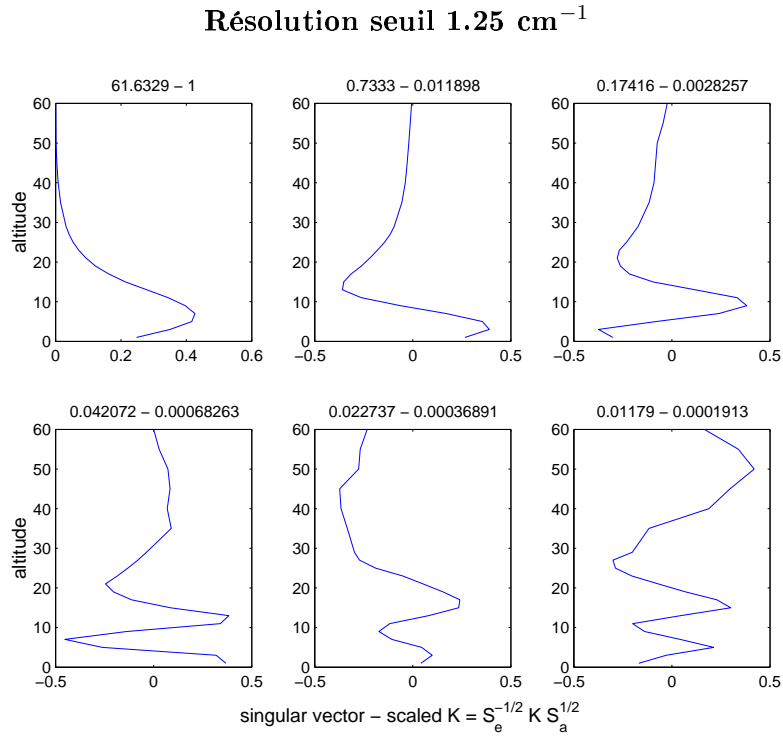
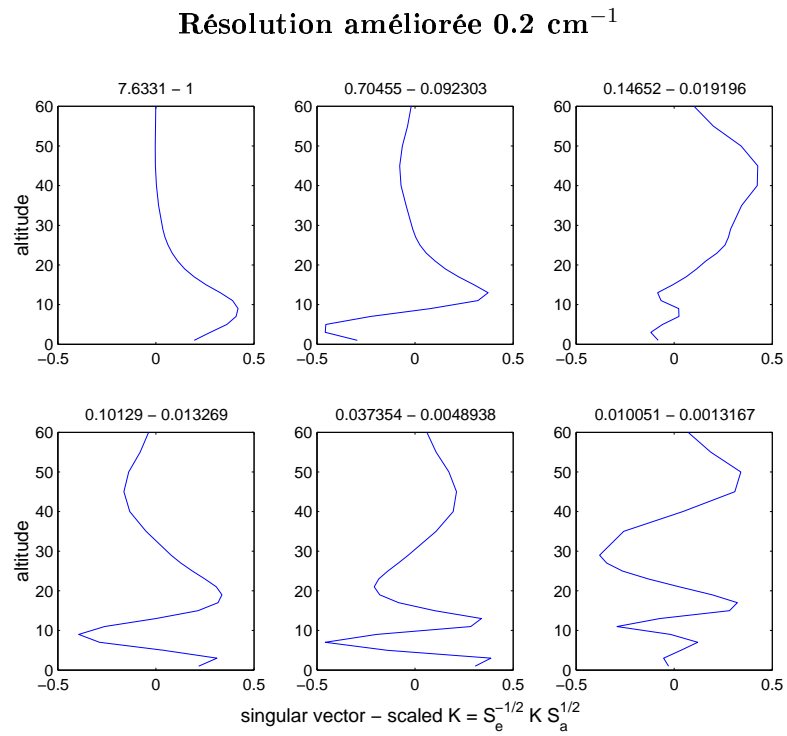
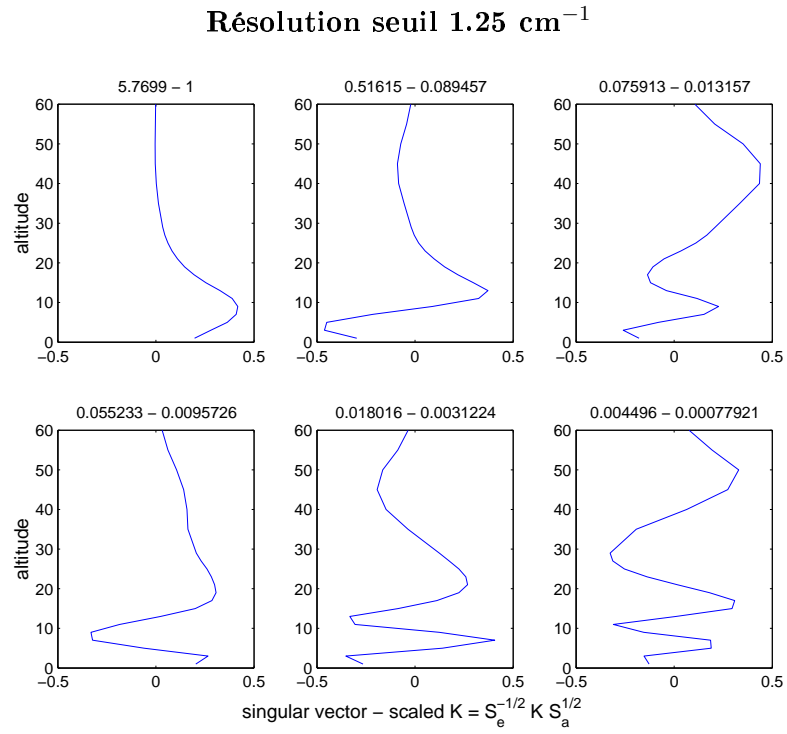


FIG. 8.6 – Même chose que la figure 8.5 pour le CO.

FIG. 8.7 – Même chose que la figure 8.5 pour le CH_4 .

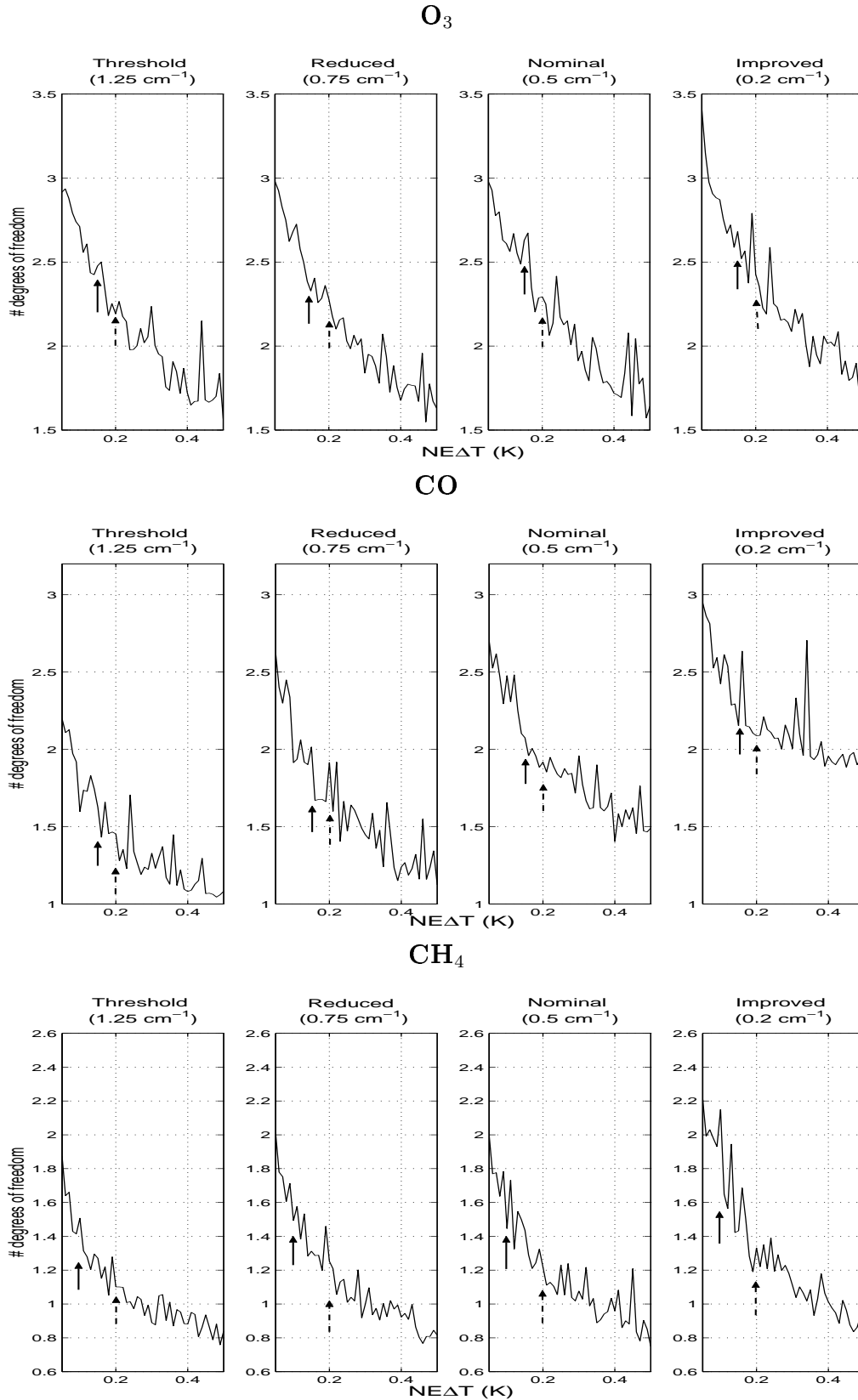


FIG. 8.8 – Nombre de degrés de liberté calculés pour l'O₃, le CO et le CH₄ à différentes résolutions spectrales en fonction du niveau de bruit. Les valeurs de bruit cible (0.15 K pour O₃ et CO et 0.1 K pour CH₄) et seuil (0.2 K) sont indiquées par les flèches en trait plein et pointillé respectivement.

Pour les trois molécules, nous pouvons cependant constater que le nombre de degrés de liberté dépend fortement du niveau de bruit. Il varie entre 2 (NEDT = 0.2 K, résolution spectrale = 1.25 cm^{-1}) et 2.5 (NEDT = 0.15 K, résolution spectrale = 0.2 cm^{-1}) pour l' O_3 , entre 1.3 (NEDT = 0.2 K, résolution spectrale = 1.25 cm^{-1}) et 2.2 (NEDT = 0.15 K, résolution spectrale = 0.2 cm^{-1}) pour le CO et entre 1.1 (NEDT = 0.2 K, résolution spectrale = 1.25 cm^{-1}) et 1.6 (NEDT = 0.1 K, résolution spectrale = 0.2 cm^{-1}) pour le CH_4 .

L'effet de la résolution spectrale est faible, en particulier pour l' O_3 et le CH_4 à un bruit supérieur à 0.1 K. Pour le CO, le nombre de degrés de liberté augmente nettement lorsque la résolution spectrale est améliorée.

8.3.4 Résolution verticale

La résolution verticale qui peut être atteinte est étudiée en utilisant les noyaux caractérisant la sensibilité des inversions aux différentes couches atmosphériques. Nous nous sommes ici placés dans le cas de l'inversion linéaire Gaussienne (voir chapitre 4 de cette thèse). Les noyaux obtenus pour l' O_3 , le CO et le CH_4 sont représentés sur les figures 8.9, 8.10 et 8.11 respectivement.

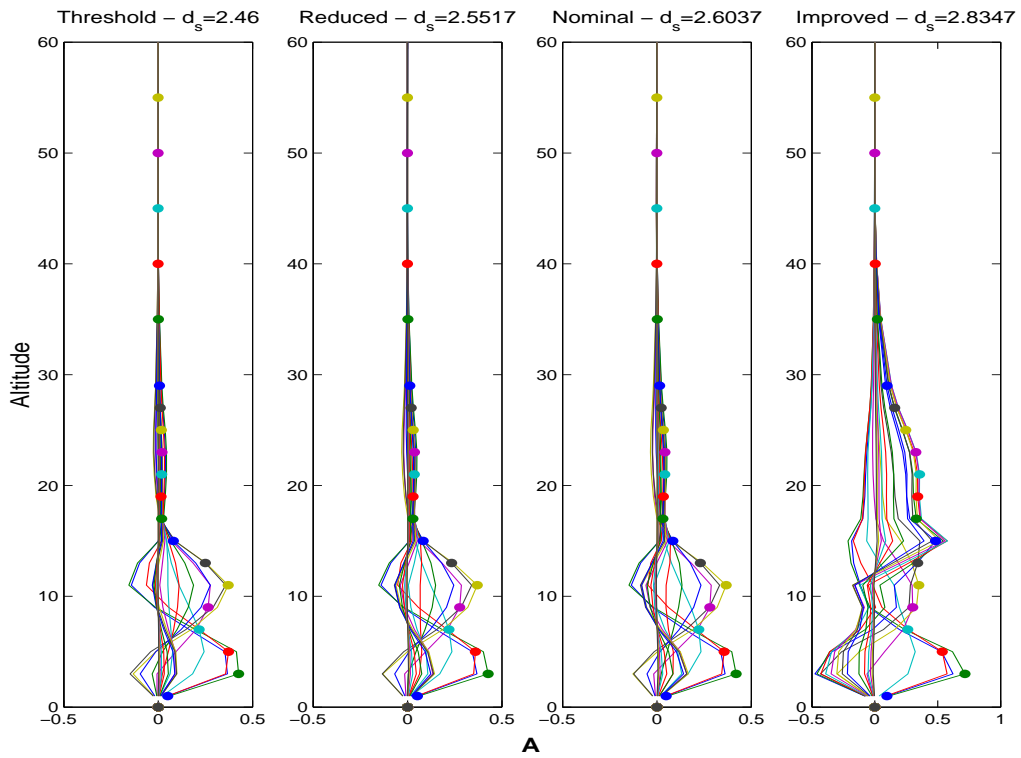


FIG. 8.9 – Noyaux obtenus pour l'inversion linéaire de l' O_3 à différentes résolutions spectrales. Les points colorés correspondent aux niveaux d'inversion associés à chaque noyau. Le nombre de degrés de liberté correspondants (à un niveau de bruit égal à 0.2 K) sont indiqués au-dessus des figures.

Comme nous l'avons déjà précisé, le noyau idéal pour une inversion à un niveau donné est égal à 1 pour ce niveau et à 0 sinon (fonctions Dirac). Comme pour IASI, les noyaux

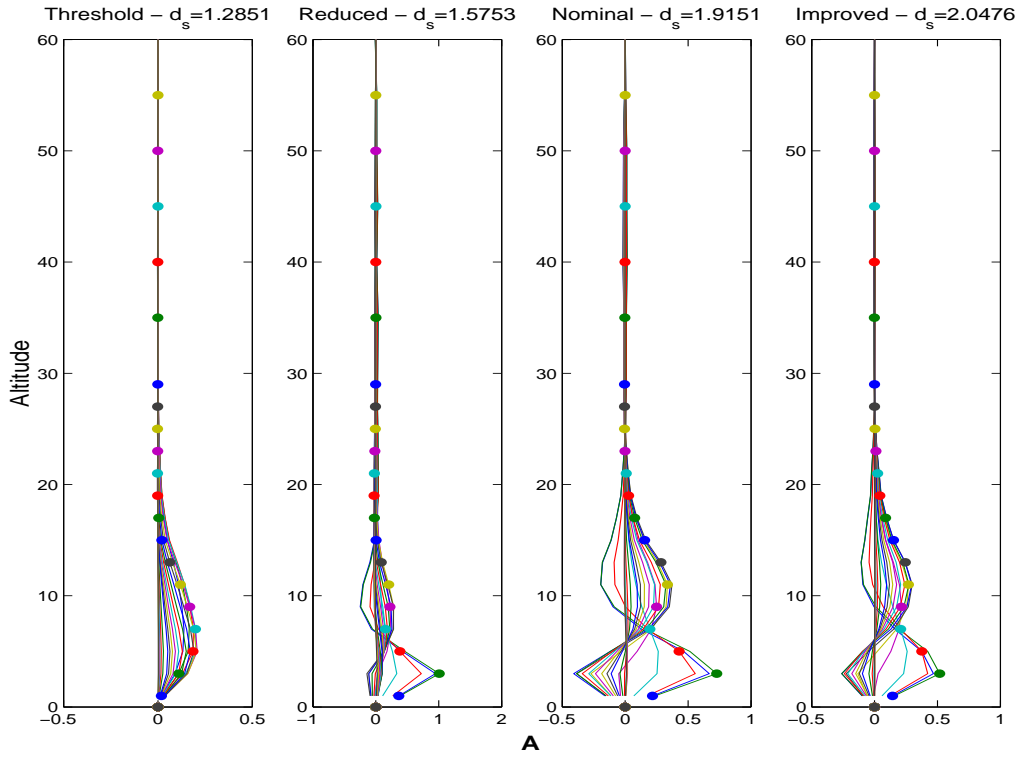
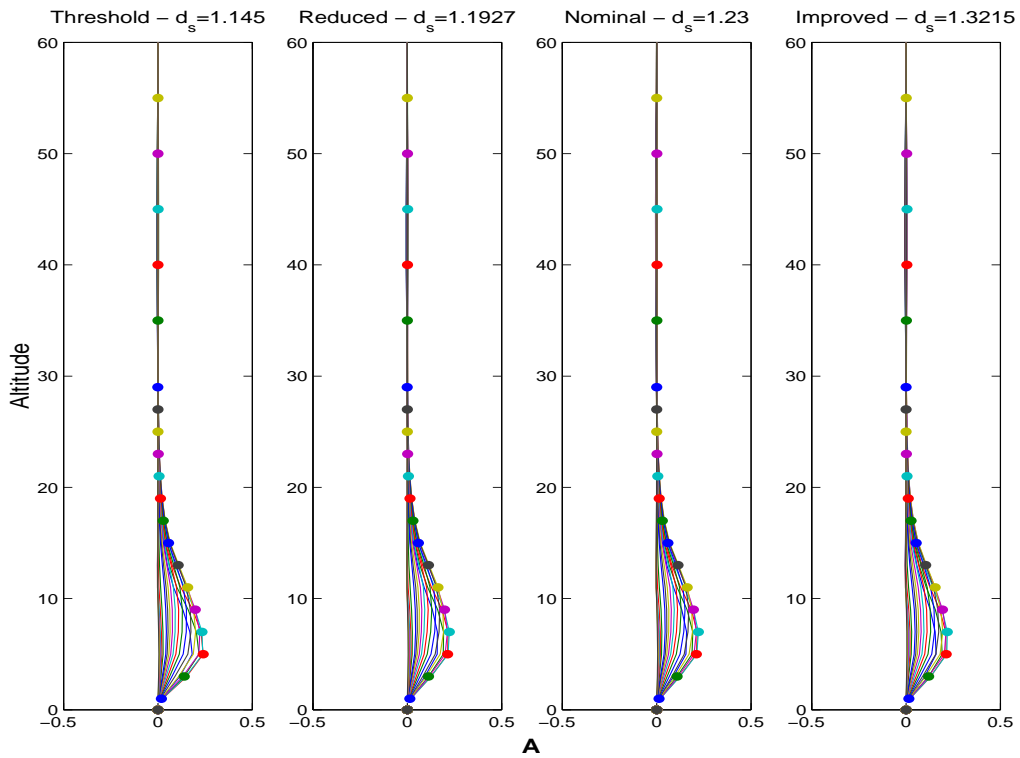


FIG. 8.10 – Même chose que la figure 8.9 mais pour le CO.

FIG. 8.11 – Même chose que la figure 8.9 mais pour le CH_4 .

obtenus sont des fonctions plus étalées dont le pic, ou le maximum de sensibilité, ne correspond pas toujours au niveau considéré. Une forte contribution des niveaux voisins est donc attendue.

Pour l'O₃ (figure 8.9), deux pics sont obtenus dans la troposphère pour toutes les résolutions spectrales considérées. Ils sont localisés autour de 4 et 11 km d'altitude. Un troisième pic est obtenu dans la stratosphère, autour de 15 km d'altitude pour la résolution spectrale améliorée. Améliorer la résolution spectrale augmente donc la quantité d'information disponible, en particulier dans la stratosphère, comme l'a déjà montré l'étude de la matrice $\mathbf{\bar{K}}$. Rappelons que la matrice de covariance \mathbf{S}_a utilisée minimise la contribution de la stratosphère puisque la variance considérée est caractéristique de la troposphère, où le rapport de mélange d'O₃ est beaucoup plus faible. La variance est d'autre par constante sur tous les niveaux et la corrélation régulière. Ceci explique en particulier que les phénomènes de compensation entre la stratosphère et la troposphère, observés lors de l'étude du chapitre 4 sur les noyaux pour l'inversion d'un profil de rapport de mélange d'ozone, ne se retrouvent pas ici.

Pour le CO (figure 8.10), les noyaux pour la résolution seuil présentent tous un pic dans la troposphère libre autour de 8 km d'altitude. L'amélioration de la résolution spectrale a comme conséquence un dédoublement du pic troposphérique, fournissant ainsi des informations mieux résolues sur la basse et la haute troposphère.

Pour le CH₄ (figure 8.11), les noyaux sont caractérisés par un pic simple autour de 8 km d'altitude. La résolution verticale n'est pas augmentée par l'amélioration de la résolution spectrale.

La largeur à mi-hauteur des noyaux fournie une estimation de la résolution verticale qui peut être atteinte avec cet instrument. Elle est estimée à 8-10 km pour les trois molécules.

8.4 Conclusions

D'une manière générale, l'étude de *Clerbaux et al.* [2003b] a permis de faire le bilan des espèces détectées par un sondeur Post-MSG dans le domaine de l'IR et des spécificités instrumentales nécessaires afin de pouvoir observer les espèces ciblées pour la chimie atmosphérique par *Lelieveld* [2003].

Pour une conclusion détaillée de l'étude espèce par espèce, le lecteur est invité à consulter le rapport EUMETSAT *Clerbaux et al.* [2003b] (<http://www.eumetsat.de>).

L'étude du contenu en information réalisé pour l'O₃, le CO et le CH₄ a montré que, malgré la présence de plusieurs informations indépendantes, l'inversion de profils verticaux de rapport de mélange n'est pas réalisable avec une bonne résolution verticale. Comme l'ont montré les travaux pour IASI, les colonnes totales peuvent être inversées avec une bonne précision pour les trois molécules. La colonne troposphérique d'O₃ peut également être restituée mais l'erreur d'inversion excède souvent la valeur seuil spécifiée (5 %), par exemple lorsque de fortes concentrations d'O₃ sont confinées dans la couche limite (erreur peut alors atteindre plus de 20 %).

Pour les améliorations à apporter au Post-MSG, l'étude suggère que l'accent soit mis sur le rapport signal/bruit par rapport à la résolution spectrale, bien que celle-ci soit importante pour la détection des espèces plus faiblement absorbantes. Les spécifications

améliorées sont recommandées pour les domaines spectraux (voir tableau 8.1) suivants : IRS-2 (faible priorité : fenêtre atmosphérique + aérosols), IRS-3 (haute priorité : O_3), IRS-4 (faible priorité : SO_2), IRS-5 (faible priorité : CH_4), IRS-6 (faible priorité : NO_2) et IRS-7 (haute priorité : CO).

Conclusion générale

L'objectif de cette thèse a été d'étudier les capacités d'un instrument embarqué sur satellite et mesurant le rayonnement du système Terre-atmosphère dans l'infrarouge (IR) en visée au nadir pour l'observation et l'analyse de la distribution de l'ozone dans l'atmosphère. Le principal enjeu était de montrer la possibilité de mesurer non seulement l'ozone total mais aussi l'ozone troposphérique et d'évaluer l'incertitude sur les inversions afin d'estimer l'apport de ce type de mesures pour l'étude du bilan global de l'ozone.

Ces travaux ont été réalisés dans le cadre de la préparation de la mission IASI (CNES/EUMETSAT), dont trois lancements successifs sont prévus à bord des satellites METOP en 2005, 2010 et 2015. Ils s'intègrent dans le projet sur l'étude du climat et de la chimie atmosphérique en contribuant, en particulier, au développement d'un algorithme opérationnel de restitution des principaux gaz traces et à l'exploitation scientifique des données inversées.

Afin d'extraire l'information concernant l'ozone des spectres IASI, nous avons isolé 148 canaux spectraux, dans la bande $1000 - 1060 \text{ cm}^{-1}$, correspondants à de fortes signatures d'absorption de l'ozone et minimisant les contributions des gaz interférant (d'après la méthode de *Clerbaux et al.* [1998]). Les études de sensibilité préliminaires menées sur ces canaux ont mis en évidence un maximum de sensibilité des luminances dans la troposphère libre autour de 8–10 km d'altitude. La sensibilité diminue rapidement au-dessous de 2 km et au-dessus de 25–30 km d'altitude environ. Nous avons d'autre part montré que 2 à 3 éléments d'information indépendants sur la distribution verticale de l'ozone peuvent être observés à partir de spectres de type IASI, avec une résolution verticale de 8–10 km environ.

La sensibilité limitée de l'instrument aux premières couches de l'atmosphère et à la haute stratosphère, ainsi que sa difficulté à découpler les différentes couches atmosphériques, justifient l'inversion de colonnes intégrées plutôt que d'un profil vertical d'ozone. Deux algorithmes d'inversion ont été développés, l'un dédié à l'inversion de la colonne totale d'ozone et de colonnes partielles intégrées entre la surface et 6, 12 et 16 km d'altitude (implémenté dans le segment-sol EUMETSAT depuis janvier 2003 pour l'inversion opérationnelle de l'ozone) et l'autre dédié à l'inversion de la colonne troposphérique d'ozone. Deux luminances sont également restituées afin de tester la cohérence interne de la méthode d'inversion.

Afin de réaliser une inversion en temps réel des luminances IR IASI, nous avons développé un algorithme d'inversion basé sur les techniques des réseaux de neurones (RN), en poursuivant les travaux de *Hadji-Lazaro et al.* [1999]. Ces techniques ont permis la modélisation d'une fonction globale, non-linéaire, liant directement les mesures IASI de niveau 1 (luminances) et de niveau 2 (température de surface et profil atmosphérique de température) aux colonnes totales et partielles d'ozone. Pour la calibration du RN, une base de données d'apprentissage la plus représentative et homogène possible a été consti-

tuée en couplant un ensemble de profils sélectionnés issus d'un modèle de chimie-transport à un code de transfert radiatif haute résolution dans des conditions de ciel clair et sans aérosol, avec une émissivité de surface moyenne et sans considérer le relief.

Nous avons également développé un module parallèle pour l'analyse de l'erreur et la caractérisation des inversions afin d'associer de manière opérationnelle aux produits inversés toutes les informations nécessaires à une utilisation fiable des mesures. Nous nous sommes pour cela basés sur le formalisme de *Rodgers* [2000]. À chaque produit inversé sont associés l'erreur due aux incertitudes sur les mesures IASI (bruit radiométrique, erreur de restitution des températures), un profil d'ozone (pouvant représenter l'information *a priori* utilisée lors de l'inversion) et une estimation du noyau caractérisant la sensibilité de l'inversion et l'erreur de lissage associée.

La performance de l'inversion estimée sur un ensemble test donne une précision globalement meilleure que 5 % sur la colonne totale et 20 % sur la colonne troposphérique, ce qui correspond aux objectifs fixés afin de rendre compte de leurs variabilités spatio-temporelles respectives. L'inversion de colonnes partielles (jusqu'à un niveau fixe) améliore la précision.

Au cours de cette thèse, nous avons eu accès aux données satellitaires mesurées par l'instrument IMG/ADEOS (août 1996 – juin 1997), précurseur de IASI, et aux mesures du second vol de l'instrument ballon LPMA/IASI à bord d'une nacelle stratosphérique (5 août 2003). Ces données ont été adaptées aux caractéristiques de IASI/METOP, nous permettant de confronter nos développements à des mesures réelles.

L'application aux données IMG nous a permis d'obtenir les premières distributions globales d'ozone troposphérique observées directement depuis l'espace. Les paramètres additionnels nécessaires à l'inversion n'étaient pas fournis par l'équipe IMG, nous avons donc réalisé une inversion simplifiée des températures de surface, les profils de température ECMWF ont été utilisés et les nuages ont été filtrés en utilisant la méthode empirique de *Hadji-Lazaro et al.* [2001]. Les luminances de test ont d'autre part permis d'écarter les inversions les moins fiables. Environ 60 % des mesures sont ainsi mises de côté. Étant donnée la mauvaise connaissance des paramètres nécessaires à l'inversion (températures et erreurs associées, niveau de bruit, nuages, émissivité), l'erreur sur les colonnes restituées est plus élevée que dans le cas des simulations.

Nous avons cependant montré que les colonnes totales IMG sont en bon accord avec les colonnes fournies par TOMS/ADEOS [*Turquety et al.*, 2002b], vérifiant la capacité de IASI à fournir une colonne totale de bonne qualité, en présentant l'avantage de fournir des mesures de jour comme de nuit.

Bien que statistiquement peu représentative, la comparaison des inversions de colonnes troposphériques et partielles avec des mesures réalisées par des sondes d'ozone a montré un bon accord dans les régions faiblement polluées. Les colonnes ont cependant tendance à être sous-estimées lorsque la concentration d'ozone dans les premières couches de l'atmosphère est élevée ou lorsque la variabilité dans la basse stratosphère et la haute troposphère est importante. Nous avons d'autre part vérifié que les profils verticaux d'ozone associés aux inversions sont généralement proches des mesures sondes, bien qu'ils soient fortement lissés.

Nous avons également comparé les colonnes troposphériques IMG aux colonnes troposphériques dérivées des observations TOMS grâce à différentes méthodes indirectes, largement utilisées actuellement, dont la plupart sont limitées aux régions tropicales. Les colonnes troposphériques IMG paraissent plus réalistes que les colonnes TOMS, et pré-

sentent d'autre part l'avantage d'être des inversions directes et globales.

L'application de l'algorithme d'inversion aux mesures LPMA/IASI a permis de montrer la capacité d'adaptation de l'algorithme opérationnel. Les colonnes inversées à partir des spectres ballon sont en effet généralement en bon accord avec les colonnes intégrées à partir du profil d'ozone mesuré par une sonde au cours du vol.

Toujours dans le cadre de la préparation de la mission IASI, des études préliminaires ont été menées pour l'exploitation des mesures d'ozone inversées (niveau 2) afin d'étudier le bilan de l'ozone dans la troposphère. Nous avons basé ces premières études sur la description en parallèle des distributions d'ozone troposphérique et de ses précurseurs, le monoxyde de carbone, le dioxyde d'azote et le méthane, des observations disponibles sur leurs sources (feux, végétation, éclairs), des inventaires des émissions de polluants et de la population mondiale, ainsi que des processus de transport des masses d'air à partir des champs analysés ECMWF. Nous avons ainsi réalisé une première analyse de la distribution d'ozone troposphérique IMG (avril 1997) qui nous a permis de mettre en évidence les apports potentiels de ce type de mesures pour la compréhension des processus régissant la distribution de l'ozone à l'échelle globale et de mieux cadrer les moyens qui devront être mis en œuvre pour une compréhension plus précise des processus.

Les travaux réalisés ont également permis d'identifier plusieurs limitations de notre méthode. Tout d'abord, certaines situations ne sont pas bien représentées dans l'ensemble d'apprentissage du fait notamment de la difficulté à obtenir un ensemble tout à fait homogène mais aussi de l'utilisation de profils issus de modèles ou de climatologies définis sur des grilles larges ($2.8^\circ \times 2.8^\circ$) et fortement lissés par rapport à la réalité. D'autre part, lors du développement et de la validation du module d'estimation des erreurs dues à l'inversion, nous avons vu que l'application des méthodes classiques de caractérisation des inversions aux RN est délicate car la connaissance *a priori* de l'algorithme est acquise de manière globale au cours de la phase d'apprentissage. La validation et l'interprétation des inversions d'ozone IMG est en outre fortement limitée par le manque de données.

Ce travail devra donc être poursuivi afin d'améliorer l'inversion des données et leur exploitation. Un ensemble d'apprentissage plus représentatif et plus réaliste devra être construit, par exemple en incluant des mesures réelles (sondes) et/ou en ajoutant des cas extrêmes artificiels (afin de tenir compte d'éventuels biais au bord du domaine couvert et d'éviter de biaiser des cas réalistes). Des études complémentaires devront également être menées afin de tenir compte du relief, des mesures IASI de part et d'autre du nadir (balayage) et des variations de l'émissivité de surface. L'impact des aérosols sur les inversions d'ozone devra également être exploré. La possibilité d'associer aux colonnes d'ozone un "flag de qualité" basé sur les erreurs estimées et sur la qualité de la restitution des luminances test (qui permettent de vérifier la cohérence interne de l'inversion) devra être étudiée. Afin de caractériser les inversions de manière plus précise, une méthode plus adaptée aux RN devra être développée. Enfin, une validation plus représentative devra être réalisée après le lancement de IASI : nous aurons alors accès à des données complètes (luminances et températures, bruit et erreurs de restitution associées, couverture nuageuse, *etc.*) avec une très bonne couverture spatiale et temporelle (2 mesures par jour en un point donné pendant 15 ans).

Les travaux futurs devront d'autre part mettre en place des méthodes plus systématiques d'exploitation des quantités inversées. L'utilisation d'un modèle atmosphérique s'avère indispensable afin de coupler les différentes informations. Le couplage des processus physico-chimiques et dynamiques dans le modèle permet de réaliser des calculs de

flux de polluants et des études de sensibilité pour vérifier l'impact des différents processus et leur compatibilité avec les observations. La simulation de trajectoires permet d'autre part d'avoir une idée plus précise de la circulation des masses d'air, en particulier de leur origine (rétro-trajectoires) et de leur transport en fonction de leur âge. Les observations peuvent également être couplées au modèle afin de contraindre l'état de l'atmosphère et générer des champs à 3 dimensions (niveau 3), en utilisant les techniques d'assimilation de données, et/ou de contraindre les sources, en utilisant les techniques de la modélisation inverse. La comparaison des champs contraints aux champs initiaux peut aider à identifier des processus physiques, chimiques ou dynamiques mal modélisés. La génération de données de niveau 3 permet également de comparer des mesures de différentes natures.

Une méthode d'assimilation séquentielle [Lamarque *et al.*, 1999; Khattatov *et al.*, 2000] a été utilisée par Clerboux *et al.* [2001] afin de valider les distributions de CO IMG en utilisant les mesures sol du réseau CMDL. La comparaison des distributions de CO simulées par le modèle MOZART avec et sans assimilation des mesures IMG a fait apparaître des différences qui pourraient s'expliquer par une mauvaise estimation des sources liées au feu de biomasse dans le modèle. Ces travaux sont actuellement adaptés afin d'assimiler les quantités totales et partielles d'O₃ dans le modèle communautaire de l'IPSL, le modèle LMDz/INCA (modèle de circulation générale du Laboratoire de Météorologie Dynamique couplé au module de chimie INCA — Interaction with Chemistry and Aerosols) [Hauglustaine *et al.*, 2003]. Pour l'ozone, notre objectif est de réaliser une inversion des sources de polluants primaires, à partir des observations de monoxyde de carbone et de méthane IASI par exemple, et d'assimiler les observations des trois espèces en même temps afin d'obtenir des données de niveau 3 de grande qualité mais aussi de contraindre des paramètres non-mesurables, directement ou indirectement liés aux espèces assimilées.

Des données d'origines différentes peuvent également être couplées grâce à ces méthodes. Lamarque *et al.* [2002] ont montré la possibilité de contraindre l'ozone troposphérique à partir de mesures d'instruments différents : sol, *in situ* et satellitaires. Une approche de ce type est envisagée afin d'optimiser l'analyse des mesures disponibles pendant la mission IASI. En particulier, le couplage de mesures réalisées dans les domaines de l'UV-visible et de l'IR permettrait d'augmenter la contrainte sur la distribution verticale de l'ozone. Les deux types d'instruments étaient présents sur ADEOS avec IMG et TOMS, ce qui nous permettra de réaliser les premières études de faisabilité. Dans le futur, ils seront présents sur EOS-AURA avec TES et OMI (lancement prévu en 2004) et sur METOP avec IASI et GOME-2.

Plusieurs projets récemment soumis à l'ASE et dédiés à l'étude de la chimie atmosphérique depuis l'espace reposent sur cette synergie IR/UV-visible : le projet GeoTROPE (Geostationary Tropospheric Pollution Explorer, coordinateur principal : J. Burrows) pour un lancement sur une orbite géostationnaire et TROC (TROpospheric Chemistry and Climate mission, coordinateur principal : C. Camy-Peyret) pour un lancement sur une orbite défilante à plus basse altitude. L'objectif de ces nouvelles missions est de fournir des mesures pour des applications opérationnelles locales et régionales comme la surveillance et la prévision de la qualité de l'air ou de l'indice UV au sol.

Dans le cadre de la définition de l'instrument Post-MSG, EUMETSAT s'intéresse également à l'utilisation de satellites géostationnaires pour l'étude de la chimie atmosphérique. L'expérience acquise au cours de cette thèse pour la préparation de IASI a été utilisée pour l'étude des capacités de Post-MSG pour l'observation des principaux gaz traces atmosphériques [Clerboux *et al.*, 2003b].

Bibliographie

- Académie des Sciences, *Ozone et propriétés oxydantes de la troposphère*, édité par l'Académie de Sciences, Rapport 30, 1993.
- Aires, F., M. Schmitt, N. Scott, and A. Chédin, The Weight Smoothing regularisation for MLP for resolving the input contribution's errors in functional interpolations, *IEEE Trans. Neural Networks*, 10, 1502–1510, 1999.
- Aires, F., C. Prigent, W.B. Rossow, and M. Rothstein, A new neural network approach including first-guess for retrieval of atmospheric water vapor, cloud liquid water path, surface temperature, and emissivities over land from satellite microwave observations, *J. Geophys. Res.*, 106, 14,887–14,907, 2001.
- Anderson, G. P., S. A. Clough, F. X. Kneizys, J.H. Chetwynd, and E. P. Shettle, AFGL atmospheric constituent profiles (0–120 km), *Tech. Rep. AFGL-TR-86-0110*, Phillips Lab., Hanscom Air Force Base, Mass., 1986.
- Arino, O., and J.-M. Rosaz, 1997 and 1998 World ATSR Fire Atlas using ERS-2 ATSR-2 data, in *Proc. Fire Science Conf., Idaho, Published by the University of Idaho and the International Association of Wildland Fire*, 177–182, 1999.
- Barret, B., M. De Mazière, and P. Demoulin, Retrieval and characterisation of ozone profiles from solar infrared spectra at the Jungfraujoch, *J. Geophys. Res.*, 107, doi :10.1029/2001JD001,298, 2002.
- Bishop, C. M., *Neural Networks for Pattern Recognition*, Oxford University Press, New York, 1995.
- Beer, R. T., A. Glavich, and D. M. Rider, Tropospheric emission spectrometer for the Earth Observing System's Aura satellite, *Appl. Opt.*, 40, 2356–2367, 2001.
- Beekmann, M., G. Ancellet, G. Mégie; H.G. J. Smit, and D. Kley, Intercomparison campaign including electrochemical sondes of ECC and Brewer-Mast type and a ground based UV-differential absorption lidar, *J. Atmos. Chem.*, 19, 259–288, 1994.
- Benzécri, J.-P., et ses collaborateurs, *L'analyse des données*, Tome 1 : La taxinomie, Dunod, 1973.
- Bey, I., D. J. Jacob, J. A. Logan, and R. M. Yantosca, Asian chemical outflow to the Pacific : Origins, pathways and budgets, *J. Geophys. Res.*, 106, 23,097–23,114, 2001.
- Blum, E. K., and L. K. Li, Approximation theory and feedforward networks, *Neural Networks*, 4, 511–515, 1991.
- Bovensmann, H., J. P. Burrows, M. Buchwitz, J. Frerick, S. Noël, V. V. Rozanov, K. V. Chance, and A. P. H. Goede, SCIAMACHY : Mission Objectives and Measurement Modes, *J. Atmos. Sci.*, 56, 127–150, 1999.

- Bradshaw, N. G., Vaughan G., and G. Ancellet, Generation of layering in the lower stratosphere by a breaking Rossby wave, *J. Geophys. Res.*, *107*, 10.1029/2001JD000432, 2002.
- Brasseur, G. P., D. A. Hauglustaine, S. Walters, P. J. Rasch, J.-F. Müller, C. Granier, and X. X. Tie, MOZART, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers, 1, Model description, *J. Geophys. Res.*, *103*, 28265–28289, 1998.
- Brasseur, G., J. J. Orlando, and G. S. Tyndall, *Atmospheric Chemistry and Global Change*, Oxford University Press, New York, 1999.
- Brewer, A.W., and J. R. Milford, The Oxford-Kew ozone sonde, *JProc. R. Soc.*, *A256*, 470–495, 1960.
- Burrows, J. P., M. Weber, M. Buchwitz, V. Rozanov, A. Ladstätter-Weissenmayer, A. Richter, R. DeBeek, R. Hoogen, K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, and M. Eisinger, The Global Ozone Monitoring Experiment (GOME) : Mission Concept and First Scientific Results, *J. Atmos. Sci.*, *56*, 151–175, 1999.
- Camy-Peyret, C., Méthodologie des mesures passives à distance dans l’atmosphère terrestre, in L’atmosphère moyenne et les observations spatiales, Université d’été internationale de physique spatiale, Marseille, août 1990, CNES, Cépaduès Éditions, pp. 397–444, 1990.
- Camy-Peyret, C., S. Payan, and C. Claveau, The instrumental spectral response function for IASI level 1C, *Tech. Rep.*, 15 pp., CNES, Paris, 2001.
- Camy-Peyret, C., S. Payan, P. Jeseck, and Y. Té, Mesures spectroscopiques de constituants et de polluants atmosphériques par techniques *in situ* et à distance, au sol ou embarquées, *C. R. Acad. Sci. Paris, série IV*, *2*, 905–922, 2001.
- Cayla, F., and P. Javelle, IASI instrument overview, *Int. Soc. Opt. Eng., Proc. SPIE 2583*, 271–281, 1995.
- Chalon, G., F. Cayla and D. Diebel, IASI : An Advanced Sounder for Operational Meteorology, Proc. of the 52nd Congress of IAF, Toulouse France, 1–5 Oct. 2001.
- Chameides, W. L., and J. C. G. Walker, A photochemical theory for tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, *78*, 8751–9760, 1973.
- Chandra, S., J. R. Ziemke, W. Min and W. G. Read, Effects of 1997-1998 El Niño on tropospheric ozone and water vapor, *Geophys. Res. Lett.*, *25*, 3867–3870, 1998.
- Chandra, S., J. R. Ziemke, and R. W. Stewart, An 11-year solar cycle in tropospheric ozone from TOMS measurements, *Geophys. Res. Lett.*, *26*, 185–188, 1999.
- Chandra, S., J. R. Ziemke, P. K. Bhartia, and R. V. Martin, Tropical tropospheric ozone : Implications for dynamics and biomass burning, *J. Geophys. Res.*, *107*, 4188, doi :10.1029/2001JD00044, 2002.
- Chandra, S., J. R. Ziemke, and R. V. Martin, Tropospheric ozone at tropical and middle latitudes derived from TOMS/MLS residual : Comparison with a global model, *J. Geophys. Res.*, *108*, 4291, doi :10.1029/2002JD002912, 2003.
- Chazette, P., C. Clerbaux, and G. Mégie, Direct estimate of methane radiative forcing by use of nadir spectral radiances, *Appl. Opt.*, *37*, 3117–3120, 1998.
- Chédin, A., A. Hollingsworth, N. A. Scott, S. Serra, C. Crevoisier, and R. Armande, Annual and seasonal variations of CO₂, NO₂, and CO concentrations

- retrieved from NOAA/TOVS satellite observations, *Geophys. Res. Lett.*, *29*, 8, 10.1029/2001JD014082, 2003.
- Chédin, A., A. Hollingsworth, N. A. Scott, R. Saunders, M. Matricardi, J. Etcheto, C. Clerbaux, R. Armante, and C. Crevoisier, The feasibility of monitoring CO₂ from high resolution infrared sounders, *J. Geophys. Res.*, *108*, 10.1029/2001JD001443, 2003.
- Chérut, F., N. A. Scott, R. Armante, B. Tournier, and A. Chédin, Contribution to the development of radiative transfer models for high spectral resolution observations in the infrared, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, *53*, 597–611, 1995.
- Chevallier, F., F. Chérut, R. Armante, C. J. Stubenrauch, and N. A. Scott, Retrieving the clear-sky vertical longwave radiative budget from TOVS : Comparison of a neural network-based retrieval and a method using geophysical parameters, *Journal of Applied Meteorology*, *39*, 1527–1541, 2000.
- Chiapello, I., P. Goloub, D. Tanré, J. Herman, O. Torres, and A. Marchand, Aerosol detection by TOMS and POLDER over oceanic regions, *J. Geophys. Res.*, *105*, 7133–7142, 2000.
- Christian, H. R., R. J. Blakeslee, and S. J. Goodman, The detection of lightning from geostationary orbit, *J. Geophys. Res.*, *94*, 13329–13337, 1989.
- Christian, H. J., R. J. Blakeslee, D. J. Boccippio, W. L. Boeck, D. E. Buechler, K. T. Driscoll, S. J. Goodman, J. M. Hall, W. J. Koshak, D. M. Mach, and M. F. Stewart, Global frequency and distribution of lightning as observed from space by the Optical Transient Detector, *J. Geophys. Res.*, *108*, 10.1029/2002JD002347, 2003.
- Clerbaux, C., P. Chazette, J. Hadji-Lazaro, and G. Mégie, Tropospheric concentrations of infrared absorbing molecules using a nadir-looking Fourier transform spectrometer : Passive infrared remote sensing of clouds and the atmosphere III, *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, *2578*, 148–153, 1995.
- Clerbaux, C., P. Chazette, J. Hadji-Lazaro, G. Mégie, J.-F. Müller, and S. A. Clough, Remote sensing of CO, CH₄, and O₃ using a spaceborne nadir-viewing interferometer, *J. Geophys. Res.*, *103*, 18999–19013, 1998.
- Clerbaux, C., J. Hadji-Lazaro, S. Payan, C. Camy-Peyret, and G. Mégie, Retrieval of CO columns from IMG/ADEOS spectra, *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, *37*, 1657–1661, 1999.
- Clerbaux, C., J. Hadji-Lazaro, D. Hauglustaine, G. Mégie, B. V. Khatatov, and J. F. Lamarque, Assimilation of carbon monoxide measured from satellite in a three-dimensional chemical-transport model, *J. Geophys. Res.*, *106*, 15385–15394, 2001.
- Clerbaux, C., J. Hadji-Lazaro, S. Payan, C. Camy-Peyret, J. Wang, D. P. Edwards, and M. Luo, Retrieval of CO from nadir remote-sensing measurements in the infrared by use of four different inversion algorithms *Appl. Opt.*, *41*, 7068–7078, 2002.
- Clerbaux, C., J. Hadji-Lazaro, S. Turquety, G. Mégie, and P.-F. Coheur, Trace gas measurements from infrared satellite for chemistry and climate applications, *Atmos. Chem. Phys.*, *3*, 1495–1508, 2003.
- Clerbaux, C., P.-F. Coheur, S. Turquety, and J. Hadji-Lazaro, Capabilities of infrared sounder observations for monitoring atmospheric composition and chemistry applications, Report for Eumesat, 2003.

- Clough, S. A., C. P. Rinsland, and P. D. Brown, Retrieval of tropospheric ozone from simulations of nadir spectral radiances as observed from space, *J. Geophys. Res.*, *100*, 16579–16593, 1995a.
- Clough, S. A., M. J. Iacono, and J.-L. Moncet, Line-by-line calculation of atmospheric fluxes and cooling rates : 2. Application to carbon dioxide, ozone, methane, nitrous oxide and halocarbons, *J. Geophys. Res.*, *100*, 16519–16535, 1995b.
- Coheur, P.-F., J. Vander aUwera, C. Clerbaux, S. Fally, M. Carleer, and R. Colin, Laboratory infrared measurements of atmospheric species and sensitivity studies in support to the mission of the IASI remote sensor, Space scientific research in Belgium, Vol III, Part 3, 1994-2000, Federal Office for Scientific, technical and cultural affairs, 2001.
- Coheur, P.-F., C. Clerbaux, and R. Colin, Measurements of halocarbons and hydrohalocarbons by satellite-borne Fourier transform spectrometers, *J. Geophys. Res.*, *108*, doi :10.1029/2002JD002649, 2002.
- Coheur, P.-F., C. Clerbaux, M. Carleer, S. Fally, R. Colin, C. Hermans, A. C. Vandaele, B. Barret, M. De Maziere, and H. De Backer, Retrieval of water vapor columns from FT visible solar absorption spectra : evaluation of spectroscopic databases, *J. Quant. Spectrosc. Rad. Transfer*, *82*, 133–150, 2003.
- Crutzen, P. J., A discussion of the chemistry of some minor constituents in the stratosphere and troposphere, *Pure Appl. Geophys.*, *106-108*, 1385–1399, 1973.
- Crutzen, P. J., and P. H. Zimmermann, The changing photochemistry of the troposphere, *Tellus*, *43*, 136–151, 1991.
- Deeter, M. N., L. K. Emmons, G. L. Francis, D. P. Edwards, J. C. Gille, J. X. Warner, B. Khattatov, D. Ziskin, J.-F. Lamarque, S.-P. Ho, V. Yudin, J.-L. Attié, D. Packman, J. Chen, D. Mao, and J. R. Drummond, Operational carbon monoxide retrieval algorithm and selected results for the MOPITT instrument, *J. Geophys. Res.*, *108*, 4399, doi :10.1029/2002JD003186, 2003.
- Deschamps, P.-Y., F.-M. Bréon, M. Leroy, A. Podaire, A. Bricaud, J.-C. Buriez, and G. Sèze, The POLDER mission : Instrumental characteristics and scientific objectives, *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, *32*, 598–615, 1994.
- Deuzé, J. L., F.-M. Bréon, C. Devaux, P. Goloub, M. Herman, B. Lafrance, F. Maignan, A. Marchand, F. Nadal, G. Perry, and D. Tanré, Remote sensing of aerosols over land surfaces from POLDER-ADEOS-1 polarized measurements, *J. Geophys. Res.*, *106*, 4913–4926, 2001.
- Drouin, A., and F. Karcher, Systematic errors on the total ozone retrievals using the 9.7-micron channel Earth radiance, *J. Geophys. Res.*, *108*, 4397, doi :10.1029/2001JD001501, 2003.
- Drummond, J. R. and G. S. Mand, The Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) instrument : Overall Performance and Calibration Requirements, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, *13*, 314–320, 1996.
- Duncan, D. N., R. V. Martin, A. C. Staudt, R. Yevich, and J. A. Logan, Interannual and seasonal variability of biomass burning emissions constrained by satellite observations, *J. Geophys. Res.*, *108*, 4100, doi :10.1029/2002JD002378, 2003.
- Edwards, D. P., J.-F. Lamarque, J.-L. Attié, L. K. Emmons, A. Richter, J.-P. Cammas, J. C. Gille, G. L. Francis, M. N. Deeter, J. Warner, D. C. Ziskin, L.V. Lyjak, J.

- R. Drummond, and J. P. Burrows, Tropospheric ozone over the tropical Atlantic : A satellite perspective, *J. Geophys. Res.*, *108*, 4237, doi :10.1029/2002JD002927, 2003.
- Emmons, L. K., D. A. Hauglustaine, J.-F. Müller, M. A. Carroll, G. P. Brasseur, D. Brunner, J. Staehelin, V. Thouret, and A. Marengo, Data composites of airborne observations of tropospheric ozone and its precursors, *J. Geophys. Res.*, *105*, 20497–20538, 2000.
- Eskes, H. J., and K. F. Boersma, Averaging kernels for DOAS total-column satellite retrievals, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, *3*, 895–910, 2003.
- Fishman, J., C. E. Watson, J. C. Larsen, and J. A. Logan, Distribution of tropospheric ozone determined from satellite data, *J. Geophys. Res.*, *95*, 3599–3617, 1990.
- Fishman, J., K. Fakhruzzaman, B. Cros, and D. Nganga, Identification of widespread pollution in the southern hemisphere deduced from satellite analyses, *Science*, *252*(5013), 1693–1696, 1991.
- Fishman, J., and V. G. Brackett, The climatological distribution of tropospheric ozone derived from satellite measurements using version 7 total Ozone Mapping Spectrometer and Stratospheric Aerosol and Gas Experiment data set, *J. Geophys. Res.*, *102*, 19275–19278, 1997.
- Fishman, J., and V. G. Balok, Calculation of daily tropospheric ozone residuals using TOMS and empirically improved SBUV measurements : Application to an ozone pollution episode over the eastern United States, *J. Geophys. Res.*, *104*, 30319–30340, 1999.
- Fishman, J., A. E. Wozniak, and J. K. Creilson, Global distribution of tropospheric ozone from satellite measurements using the empirically corrected tropospheric ozone residual technique : Identification of regional aspects of air pollution. *Atmos. Chem. Phys.*, *3*, 893–907, 2003.
- Gamache, R. R., R. L. Hawkins, and L. S. Rothman, Total internal partition sums in the temperature range 70–3000 K : Atmospheric Linear molecules, *J. Mol. Spectrosc.*, *142*, 205–219, 1990.
- Generoso, S., F.-M. Bréon, Y. Balkanski, O. Boucher, and M. Schulz, Improving the seasonal cycle and interannual variations of biomass burning aerosol sources, *Atmos. Chem. Phys.*, *3*, 1211–1222, 2003.
- Gibson, J. K., P. Kallberg, S. Uppsala, A. Hernandez, A. Nomura, and E. Serrano, ECMWF Re-analysis, Project Report Series. 1. ERA Description, Technical report, ECMWF, Shinfield Park, Reading, U.K., 72pp., 1997.
- Girard A. et C. Camy-Peyret, Mesures Satellitaires des constituants minoritaires de l’atmosphère par spectrométrie IR : instrumentation et résultats récents, in Espace, Aéronautique et Environnement Atmosphérique, Colloque international, Toulouse, mars 1994, Cépaduès Editions, pp. 261–282, 1994.
- Golding, B. W., S. Senesi, K. Browning, B. Bizzarri, W. Benesch, D. Rosenfeld, V. Levisani, H. Roesli, U. Platt, T. E. Nordeng, J. T. Carmona, P. Ambrosetti, P. Pagano, Eumets position paper on observation requirements for nowcasting and very-short range forecasting in 2015–2025, Annex A, Report for Eumetsat, version NWC-05.04 (21-01-03).

- Gribanov, K. G., V. I. Zakharov, S. A. Tashkun, and V. G. Tyuterev, A new software tool for radiative transfer calculations and its application to IMG/ADEOS spectra, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **68**, 435–451, 2001.
- Hadji-Lazaro, J., C. Clerbaux, and S. Thiria, An inversion algorithm using neural networks to retrieve atmospheric CO total columns from high-resolution nadir radiances, *J. Geophys. Res.*, **104**, 23841–23854, 1999.
- Hadji-Lazaro, J., Utilisation de réseaux de neurones pour l'inversion d'observations spatiales et la détermination des concentrations de constituants minoritaires dans la troposphère, Thèse de Doctorat, Université Pierre et Marie Curie, Paris 6, 1999.
- Hadji-Lazaro, J., C. Clerbaux, P. Couvert, P. Chazette, and C. Boone, Cloud filter for CO retrieval from IMG infrared spectra using ECMWF temperatures and POLDER cloud data, *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 2397–2400, 2001.
- Hauglustaine, D. A., G. P. Brasseur, S. Walters, P. J. Rasch, J.-F. Müller, L. K. Emmons, and M. A. Carroll, MOZART, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers, 2, Model results and evaluation, *J. Geophys. Res.*, **103**, 28291–28335, 1998.
- Hauglustaine, D., F. Hourdin, L. Jourdain, M.-A. Filiberti, S. Walters, and J.-F. Lamarque, Interactive chemistry in the Laboratoire de Meteorologie Dynamique general circulation model : description and background tropospheric chemistry evaluation, *accepté J. Geophys. Res.*, 2003.
- Heath, D. F., A. J. Krueger, H. R. Roeder, and B. D. Henderson, The solar backscatter ultraviolet and total ozone mapping spectrometer (SBUV/TOMS) for Nimbus G, *Opt. Eng.*, **14**, 323–331, 1975.
- Herman, J. R., P. K. Bhartia, O. Torres, C. Hsu, C. Seftor, and E. Celarier, Global distribution of UV-absorbing aerosols from Nimbus 7/TOMS data, *J. Geophys. Res.*, **102**, 16,911–16,922, 1997.
- Hoinka, K. P., The tropopause : discovery, definition and demarcation, *Meteorol. Zeitschrift*, **6**, 281–303, 1997.
- Holton, J.R., *An Introduction to Dynamic Meteorology*, 3rd ed., Academic Press.
- Holton, J.R., P. H. Haynes, M. E. McIntyre, A. R. Douglass, R. B. Rood, and L. Pfister, Stratosphere-troposphere exchange, *Rev. Geophys.*, **33**, 403, 1995.
- Hornik, K., M. Stinchcombe, and H. White, Multilayer feedforward networks are universal approximators, *Neural Networks*, **2**, 359–366, 1989.
- Hudson, R. D., J.-H. Kim, and A. M. Thompson, On the derivation of tropospheric column from radiances measured by the total ozone mapping spectrometer, *J. Geophys. Res.*, **100**, 11137–11145, 1995.
- Hudson, R. D., and A. M. Thompson, Tropical tropospheric ozone from the total ozone mapping spectrometer by a modified residual method, *J. Geophys. Res.*, **103**, 22129–22145, 1998.
- Hsu, N. C., J. R. Herman, P. K. Bhartia, C. J. Seftor, O. Torres, a. M. Thomspson, J. F. Gleason, T. F. Eck, and B. N. Holben, Detection of biomass burning smoke from TOMS measurements, *Geophys. Res. Lett.*, **23**, 745–748, 1996.
- IASI Sounding Science Working Group, *IASI Science Plan*, edited by C. Camy-Peyret and J. Eyre, ISSWG, 1998.

- IPCC 2001 : Climate Change 2001 : The Scientific Basis, Contribution of working group I to the third assessment report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, edited by J. T. Houghton, Y. Ding, D. J. Griggs, M. Noguer, P. J. van der Linden, X. Dai, K. Maskell, and C. Maskell, Cambridge Univ. Press, 2001.
- Jacob, D. J., B.G. Heikes, S.-M. Fan, J.A. Logan, D.L. Mauzerall, J.D. Bradshaw, H.B. Singh, G.L. Gregory, R.W. Talbot, D.R. Blake, and G.W. Sachse, Origin of ozone and NO_x in the tropical troposphere : A photochemical analysis of aircraft observations over the South Atlantic basin, *J. Geophys. Res.*, *101*, 24235–24250, 1996.
- Jacob, D., J. A. Logan, and P. Murti, Effect of rising Asian emissions on surface ozone in the United States, *Geophys. Res. Lett.*, *26*, 2175–2178, 1999.
- Jaffe, D., et al., Transport of Asian air pollution to North America, *Geophys. Res. Lett.*, *26*, 711–714, 1999.
- Keith, D. W., and J. G. Anderson, Accurate spectrally resolved infrared radiance observation from space : Implications for the detection of decade-to-century-scale climatic change, *J. of Climate*, *14*, 979–990, 2001.
- Khattatov, B. V., J.-F. Lamarque, L. V. Lyjak, R. Menard, P. Levelt, X. Tie, G. P. Brasseur, and J. C. Gille, Assimilation of satellite observations of long-lived chemical species in global chemistry transport models, *J. Geophys. Res.*, *105*, 29235–29144, 2000.
- Kim, J. H., M. J. Newchurch, and K. Han, Distribution of tropical tropospheric ozone determined by the scan-angle method applied to TOMS measurements, *J. Atmos. Sci.*, *58*, 2699–2708, 2001.
- Klenk, K. F., P. K. Bhartia, A. J. Fleig, V. G. Kaveeshwar, R. D. McPeters, and P.M. Smith, Total ozone determination from the backscattered ultraviolet (BUV) experiment, *J. Appl. Meteorol.*, *21*, 1672–1684, 1982.
- Kobayashi, H. , A. Shimota, K. Kondo, E. Okumura, Y. Kameda, H. Shimoda, and T. Ogawa, Development and evaluation of the interferometric monitor for greenhouse gases : a high-throughput Fourier-transform infrared radiometer for nadir Earth observation, *Appl. Opt.*, *38*, 6801–6807, 1999.
- Kobayashi, H., A. Shimota, C. Yoshigahara, I. Yoshida, Y. Uehara, and K. Kondo, Satellite-borne high-resolution FTIR for lower atmosphere sounding and its evaluation, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, *37*, 1496–1507, 1999.
- Kohmyr, W. D., Electrochemical concentration cells for gas analysis, *Ann. Geophys.*, *25*, 203–210, 1969.
- Kohmyr, W. D., R. A. Barnes, G.B. Brothers, J. A. Lathrop, and D. P. Opperman, Electrochemical concentration cell ozonesonde performance evaluation during STOIC 1989, *J. Geophys. Res.*, *100*, 9231–9244, 1995.
- Kowol-Santen, J., and G. Ancellet, Mesoscale analysis of transport across the subtropical tropopause, *J. Geophys. Res.*, *27*, 3345–3348, 2000.
- Kruglanski, M., and M. De Mazière, Impact of aerosols on IASI observations, in Space Scientific Research in Belgium, 3, Part 3, OSTC (Ed.), 89–95, 2002.
- Krueger, A. J. and G. Jaross, TOMS/ADEOS Instrument Characterization, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.* *37*, 1543–1549, 1999.

- Lamarque J.-F. , B. V. Khattatov, J. C. Gille, and G. P. Brasseur, Assimilation of Measurements of Air Pollution from Space (MAPS) CO in a three-dimensional model, *J. Geophys. Res.*, *104*, 26209–26218, 1999.
- Lamarque J.-F. , B. V. Khattatov, and J. C. Gille, Constraining tropospheric ozone column through data assimilation, *J. Geophys. Res.*, *107*, 4651, 2002.
- Laan, E., D. de Winter, J. de Vries, P. F. Levelt, G. H. van den Oord, A. Malkki, G. W. Leppelmeier, and E. Hilsenrath, Toward the use of the Ozone Monitoring Instrument (OMI), *Proc. SPIE 4540*, 270–277, 2001.
- Lebart, L., A. Morineau et J. P. Fénelon, *Traitement des données statistiques : méthodes et programmes*, Dunod, 1982.
- Lee, D. S., I. Köhler, E. Grobler, F. Rohrer, R. Sauen, L. Gallardo-Klenner, J. J. G. Olivier, F. J. Dentener, and A. F. Bouwman, Estimates of global NO_x emissions and their uncertainties, *Atmos. Env.*, *31*, 1735–1749, 1997.
- Lelieveld, J., and F. J. Dentener, What controls tropospheric ozone?, *J. Geophys. Res.*, *105*, 3531–3551, 2000.
- Lelieveld J., Geostationary Satellite Observations for Monitoring Atmospheric Composition and Chemistry Applications, Report for Eumesat, 2003.
- Lenoble, J., *Atmospheric Radiative Transfert*, A. Deepak Publishing, 1993.
- Leroy M., J. L. Deuzé, F. M. Bréon, O. Hautecoeur, M. Herman, J. C. Buriez, D. Tanré, S. Bouffies, P. Chazette, and J. L. Roujean, Retrieval of atmospheric properties and surface bidirectional reflectances over the land from POLDER. *J. Geophys. Res.*, *102*, 17023–17037, 1997.
- Li, D., and K. P. Shine, A 4-dimensional ozone climatology for UGAMP models, *Internal Report No. 35*, U.G.A.M.P., 1995.
- Li, Q., D. J. Jacob, J. A. Logan, I. Bey, R. M. Yantosca, H. Liu, R. V. Martin, A. M. Fiore, B. D. Field, and B. N. Duncan, A Tropospheric Ozone Maximum Over the Middle East, *Geophys. Res. Lett.*, *28*, 3235–3238, 2001.
- Li, Q., D. J. Jacob, I. Bey, P. I. Palmer, B. N. Duncan, B. D. Field, R. V. Martin, A. M. Fiore, R. M. Yantosca, D. P. Parrish, P. G. Simmonds, and S. J. Oltmans, Transatlantic transport of pollution and its effects on surface ozone in Europe and North America, *J. Geophys. Res.*, *107*, doi :10.1029/2001JD001422, 2002.
- Logan, J. A., M. J. Prather, S. C. Wofsy, and M. B. McElroy, Tropospheric Chemistry : A Global Perspective, *J. Geophys. Res.*, *86*, 7210–7254, 1981.
- Logan, J. A., Trends in the vertical distribution of ozone : An analysis of ozonesonde data, *J. Geophys. Res.*, *99*, 22553–25585, 1994.
- Logan, J. A., An analysis of ozonesonde data for the troposphere : Recommendations for testing 3-D models and development of a gridded climatology for tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, *104*, 16115–16149, 1999.
- Logan, J. A., D. B. A. Jones, I. A. Megretskaia, S.J. Oltmans, B. J. Johnson, H. Vömel, W. J. Randel, W. Kimani, and F. J. Schmidlin, Quasibiennial oscillation in tropical ozone as revealed by ozonesonde and satellite data, *J. Geophys. Res.*, *108*, 4244, doi :10.1029/2002JD002170, 2003.

- Marchand, M., S. Godin, A. Hauchecorne, F. Lefevre, S. Bekki, and M. Chipperfield, Influence of polar ozone loss on northern midlatitude regions estimated by a high-resolution chemistry transport model during winter 1999/2000, *J. geophys. res.*, *108*, 8326, doi :10.1029/2001JD000906, 2003.
- Martin, R. V., D. J. Jacob, J. A. Logan, J. R. Ziemke, and R. Washington, Detection of lightning influence on tropical tropospheric ozone, *Geophys. Res. Lett.*, *27*, 1639–1642, 2000.
- Martin, R. V., D. J. Jacob, J. A. Logan, I. Bey, R. M. Yantosca, A. C. Staudt, Q. Li, A. M. Fiore, B. N. Duncan, and H. Liu, Interpretation of TOMS observations of tropical tropospheric ozone with a global model and in situ observations, *J. Geophys. Res.*, *107*, 4351, doi :10.1029/2001JD001480, 2002a.
- Martin, R. V., K. Chance, D. J. Jacob, T. P. Kurosu, R. J. D. Spurr, E. Bucsela, J. F. Gleason, P.I. Palmer, I. Bey, A. M. Fiore, Q. Li, R. M. Yantosca, and R. B. A. Koelemeijer, An improved retrieval of tropospheric nitrogen dioxide from GOME, *J. Geophys. Res.*, *107*, 4437, doi :10.1029/2001JD001027, 2002b.
- Martin, R. V., D. J. Jacob, K. Chance, T. P. Kurosu, P.I. Palmer, and M.J. Ewans, Global inventory of nitrogen oxide emissions constrained by space-based observations of NO₂ columns, *J. Geophys. Res.*, sous presse, 2003.
- Matricardi, M., and R. W. Saunders, A fast radiative transfer model for simulation of IASI radiances, *Appl. Opt.*, *38*, 5679–5691, 1999.
- Müller, C., Calculs du profil de Voigt appliqués aux raies infrarouges de la stratosphère et de la mésosphère, *Académie royale de Belgique, Bulletin de la classe des sciences*, 5^e série (LXX), 1984.
- Olivier, J.G.J., Bouwman, A.F., Van der Maas, C.W.M., Berdowski, J.J.M, Veldt, C. Bloos, J.P.J., Visschedijk, A.J.H., Zandveld, P.Y.J., Haverlag, J.L, Description of EDGAR Version 2.0. A set of global emission inventories of greenhouse gases and ozone-depleting substances for all anthropogenic and most natural sources on a per country basis and on 1°x1° grid, RIVM/TNO report 771060 002, Bilthoven, National Institute of Public Health and the Environment, 1996.
- Olivier, J.G.J. and J.J.M. Berdowski, Global emissions sources and sinks. In : Berdowski, J., Guicherit, R. and B.J. Heij (eds.) "The Climate System", A.A. Balkema Publishers/Swets & Zeitlinger Publishers, Lisse, The Netherlands, pp. 33-78, 2001.
- Pagano, T., D. A. Elliot, M. R. Gunson, H. H. Aumann, S. L. Gaiser, N. Dehghani, and K. Overoye, Operational Readiness of the Atmospheric Infrared Sounder on the Earth Observing System Aqua Spacecraft, *Proc. SPIE 4483-04*, 2001.
- Palmèn, E., and C. W. Newton, *Atmospheric Circulation Systems*, Academic Press, 1969.
- Palmer, P. I., D. J. Jacob, K. Chance, R. V. Martin, R. J. D. Spurr, T. P. Kurosu, I. Bey, R. Yantosca, A. Fiore, and Q. Li., Air mass factor formulation for spectroscopic measurements from satellites : application to formaldehyde retrievals from GOME, *J. Geophys. Res.*, *106*, 14539–14550, 2001.
- Palmer, P. I., D. J. Jacob, A. M. Fiore, R. V. Martin, K. Chance, and T. P. Kurosu, Mapping isoprene emissions over North America using formaldehyde column observations from space, *J. Geophys. Res.*, *108*, 4180, doi :10.1029/2002JD002153, 2003.

- Parol, F., J.-C. Buriez, C. Vanbaese, P. Couvert, G. Sèze, P. Goloub, and S. Cheinet, First results of the POLDER "Earth Radiation Budget and Clouds" operational algorithm, *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, *37*, 1597–1612, 1999.
- Payan, S., C. Camy-Peyret, and P. Jaseck, IMG instrument response function and retrieval of CO and OCS, *8th International Workshop on Atmospheric Science from Space using Fourier Transform Spectrometry (ASSFTS)*, Météo France, Toulouse, 1998.
- Pétron, G., Modélisation inverse des émissions du monoxyde de carbone, Thèse de Doctorat, Université Pierre et Marie Curie, Paris 6, 2003.
- Pétron, G., C. Granier, B. Khattatov, J. F. Lamarque, V. Yudin, J.-F. Müller, and J. Gille, Inverse modeling of carbon monoxide surface emissions using NOAA-CMDL network observations, *J. Geophys. Res.*, *107*, 4761, doi :10.1029/2001JD001305, 2002.
- Phulpin, T., F. Cayla, G. Chalon, D. Diebel and D. Schlüssel, IASI onboard Metop : Project status and scientific preparation, Proc. of the 12th International TOVS Study Conference, 26/02 to 4/03/2002, Lorne Vic, Australia, 2002.
- Prunet, P., V. Casse, and J.-N. Thepaut, IASI information content : instrument characterisation and the impact of a priori information, *Tellus*, *53*, 380–402, 2001.
- Richaume, P., F. Badran, M. Crepon, C. Mejia, H. Roquet, and S. Thiria, Neural network wind retrieval from ERS-1 scatterometer data, *J. Geophys. Res.*, *105*, 8737–8751, 2000.
- Richter, A. and J. P. Burrows, Tropospheric NO₂ from GOME measurements, *Adv. Space Res.*, *29(11)*, 1673–1683, 2002.
- Richter, A., F. Wittrock, A. Ladstätter-Weissenmayer, and J.P. Burrows, GOME measurements of stratospheric and tropospheric BrO, *Adv. Space Res.*, *29(11)*, 1667–1672, 2002.
- Rodgers, C. D., Retrieval of atmospheric temperature and composition from remote measurements of thermal radiation, *Rev. Geophys.*, *14*, 609–624, 1976.
- Rodgers, C. D., Characterization and error analysis of profiles retrieved from remote sounding measurements, *Journal of Geophysical Research*, *95*, 5587–5595, 1990.
- Rodgers, C. D., *Inverse methods for Atmospheric Sounding : Theory and Practice*, *Atm. Oceanic Planet. Phys.*, vol. 2, 238 pp., World Sci., River Edge, N. J., 2000.
- Rodgers, C. D., and B. Connor, Intercomparison of remote sounding instruments, *J. Geophys. Res.*, *108*, 4116, doi :10.1029/2002JD002299, 2003.
- Rothman et al., The Hitran molecular database : Editions of 1991 and 1992, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfert*, *48(5,6)*, 469–507, 1992.
- Rothman et al., The Hitran molecular spectroscopic database and hawks (Hitran Atmospheric workstation) : 1996 edition, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfert*, *60(5)*, 665–710, 1998.
- Rothman, L. S., A. Barbe, D.C. Benner, L.R. Brown, C. Camy-Peyret, M.R. Carleer, K. Chance, C. Clerbaux, V. Dana, V.M. Devi, A. Fayt, J.-M. Flaud, R.R. Gamache, A. Goldman, D. Jacquemart, K.W. Jucks, W.J. Lafferty, J.-Y. Mandin, S.T. Massie, V. Nemtchinov, D.A. Newnham, A. Perrin, C.P. Rinsland, J. Schroeder, K.M. Smith, M.A.H. Smith, K. Tang, R.A. Toth, J. Vander Auwera, P. Varanasi, and K. Yoshino, The HITRAN Molecular Spectroscopic Database : Edition of 2000 including updates of 2001, *J. Quant. Rad. Transfer*, *82*, 5–44, 2003.

- Saporta, G., *Théories et méthodes de la statistique*, Publications de l'Institut Français du Pétrole, Technip, 1978.
- Shultz, M. G., On the use of ATSR fire count data to estimate the seasonal and interannual variability of vegetation fire emissions, *Atm. Chem. Phys.*, *2*, 387–395, 2002.
- Stohl, A., and T. Trickl, A textbook example of long-range transport : Simultaneous observation of ozone maxima of stratospheric and North American origin in the free troposphere over Europe, *J. Geophys. Res.*, *104*, 30445–30462, 1999.
- Stohl, A., A 1-year Lagrangian “climatology” of airstreams in the Northern Hemisphere and lowermost stratosphere, *J. Geophys. Res.*, *106*, 7263–7279, 2001.
- Stohl, A., S. Eckhardt, C. Forster, P. James, and N. Spichtinger, On the pathways and timescales of intercontinental air pollution transport, *J. Geophys. Res.*, *107*, doi :10.1029/2001JD001396, 2002.
- Smith, L. M., H. M. Woolf, C. M. Hayden, D. Q. Wark, and L. M. McMillin, The TIROS-N Operational Vertical Sounder, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, *60*, 1177–1187, 1979.
- Tanré, D., F.-M. Bréon, J. L. Deuzé, M. Herman, P. Goloub, F. Nadal, and A. Marchand, Global observation of anthropogenic aerosols from satellite, *Geophys. Res. Lett.*, *28*, 4555–4558, 2001.
- Té, Y., C. Camy-Peyret, S. Payant, G. Perron, and G. Aubertin, Balloonborne calibrated spectroradiometer for atmospheric nadir sounding, *Appl. Opt.*, *41*, 6431–6441, 2002.
- Thiria, S., C. Mejia, F. Badran, and M. Crépon, A neural network approach for modeling nonlinear transfer functions : Application for wind retrieval from spaceborne scatterometer data, *J. Geophys. Res.*, *98*, 22827–22841, 1993.
- Thompson, A. M., The oxydizing capacity of the Earth's atmosphere : Probable past and future changes, *Science*, *256*, 1157–1165, 1992.
- Thompson, A. M., B. G. Doddridge, J. C. White, R. D. Hudson, W. T. Luke, J. E. Johnson, B. J. Johnson, S. J. Oltmans, and R. Weller, Tropical tropospheric ozone (TTO) maps from Nimbus 7 and Earth Probe TOMS by the modified-residual method : Evaluation with sondes, ENSO signals, trends from Atlantic regional time series, *J. Geophys. Res.*, *104*, 26961–26975, 1999.
- Thompson, A. M., B. G. Doddridge, J. C. White, R. D. Hudson, W. T. Luke, J. E. Johnson, B. J. Johnson, S. J. Oltmans, and R. Weller, A tropical Atlantic paradox : Shipboard and satellite views of the tropospheric ozone maximum and wave-one in January-February 1999, *Geophys. Res. Lett.*, *27*, 3317–3320, 2000.
- Thompson, A. M., J. C. Witte, R. D. Hudson, H. Guo, J. R. Herman, and M. Fujiwara, Tropical tropospheric ozone and biomass burning, *Science*, *291*, 2128–2132, 2001.
- Torres, O., P. K. Bhartia, J. R. Herman, Z. Ahmad, and J. Gleason, Derivation of aerosol properties from satellite measurements of backscattered ultraviolet radiation : Theoretical basis, *J. Geophys. Res.*, *103*, 17099–17110, 1998.
- Turquety, S., J. Hadji-Lazaro, and C. Clerbaux, Retrieval of ozone from infrared IASI measurements, *Proc. SPIE 4539*, 106–115, 2002.
- Turquety, S., J. Hadji-Lazaro, and C. Clerbaux, First satellite ozone distributions retrieved from nadir high-resolution infrared spectra, *Geophys. Res. Lett.*, *29*, 2198, doi :10.1029/2002GL016431, 2002.

- Turquety, S., J. Hadji-Lazaro, and C. Clerbaux, Trace gas retrieval algorithm for the infrared atmospheric sounding interferometer, *manuscrit en préparation*, 2003.
- Wilber, A. C., D. P. Kratz, and S. K. Gupta, Surface emissivity maps for use in satellite retrievals of longwave radiation, *Tech. Publ. NASA/TP-1999-209362*, 35 pp., Nat. Aeron. and Space Adm., 1999.
- Wild, O., and H. Akimoto, Intercontinental transport of ozone and its precursors in a three-dimensional global CTM, *J. Geophys. Res.*, *106*, 27729–27744, 2001.
- World Meteorological Organization (WMO), Scientific assessment of ozone depletion : 1998, *Global Ozone Research and Monitoring Project — Report No. 44*, Geneva, 1999.
- Yienger, J. J., and H. Levy, Empirical model of global soil-biogenic NO_x emissions, *J. Geophys. Res.*, *100*, 11447–11464, 1995.
- Yevich, R. and J. A. Logan, An assesment of biofuel use and burning of agricultural waste in the developing world, *Global Biogeochem. Cycles*, in press, 2003.
- Ziemke, J. R., S. Chandra, and P. K. Bhartia, Two new methods for deriving tropospheric column ozone from TOMS measurements : Assimilated UARS MLS/HALOE and convective-cloud differential techniques, *J. Geophys. Res.*, *103*, 22115–22127, 1998.
- Ziemke, J. R., and S. Chandra, Seasonal and interannual variabilities in tropical tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, *104*, 21425–21442, 1999.
- Ziemke, J. R., S. Chandra, and P. K. Bhartia, Cloud slicing : A new technique to derive upper tropospheric ozone from satellite measurements, *J. Geophys. Res.*, *106*, 9853–9867, 2001.
- Ziemke, J. R., S. Chandra, and P. K. Bhartia, Upper tropospheric ozone derived from the cloud slicing technique : Implication for large-scale convection, *J. Geophys. Res.*, *108*, 4390, doi :10.1029/2002JD002919, 2003.